



Modélisation numérique de l'interaction onde-matière dans des matériaux nanostructurés à base de terres rares ou de nanoparticules métalliques pour la photonique ou la plasmonique

Alexandre Fafin

► To cite this version:

Alexandre Fafin. Modélisation numérique de l'interaction onde-matière dans des matériaux nanostructurés à base de terres rares ou de nanoparticules métalliques pour la photonique ou la plasmonique. Optique [physics.optics]. Université de Caen, 2014. Français. NNT : . tel-01097835

HAL Id: tel-01097835

<https://theses.hal.science/tel-01097835>

Submitted on 22 Dec 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de Caen Basse-Normandie

Ecole doctorale *SIMEM*

Thèse de doctorat

présentée et soutenue le 05/12/2014

par

Alexandre Fafin

pour obtenir le

Doctorat de l'Université de Caen Basse-Normandie

Spécialité : *Milieus denses, matériaux et composants*

Modélisation numérique de l'interaction onde-matière dans des matériaux nanostructurés à base de terres rares ou de nanoparticules métalliques pour la photonique ou la plasmonique

Directeur de thèse : *Christian Dufour*

Co-directeur de thèse : *Julien Cardin*

Jury

Dominique Leduc	Maître de conférence, Université de Nantes, GEM	Rapporteur
Alexandre Vial	Professeur des universités, Université de technologie de Troyes, LNIO	Rapporteur
Fabrice Gourbilleau	Directeur de recherche CNRS, CIMAP	Examineur
Giancarlo Rizza	Ingénieur CEA, École polytechnique, LSI	Examineur
Christian Dufour	Professeur des universités, Université de Caen, CIMAP	Directeur de thèse
Julien Cardin	Ingénieur de recherche, Université de Caen, CIMAP	Codirecteur de thèse

A mes parents

A Julia

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au laboratoire CIMAP je tiens donc à commencer par remercier les directeurs Serges Bouffard et Amine Cassimi de m'avoir accueilli pendant ces trois années.

Je voudrais remercier chaleureusement Christian Dufour qui m'a d'abord fait aimer la physique à travers ses cours, puis m'a accueilli durant les deux stages de master et pendant cette thèse. J'ai beaucoup apprécié sa disponibilité et les nombreux échanges que nous avons eu, notamment les feuilles de papier noircies à réécrire les équations de Maxwell. Son encadrement a été pour beaucoup dans la réalisation de ce travail et l'enrichissement de mes connaissances et compétences.

De la même façon je voudrais exprimer ma reconnaissance à Julien Cardin qui a codirigé cette thèse et avec qui j'ai eu la chance de partager le bureau. Toujours disponible, j'ai pu apprendre énormément à ses côtés sur l'optique, la physique et de nombreux autres sujets (avec quelques mots de suédois, d'allemand ou de russe). Je n'oublierai pas sa curiosité scientifique et sa rigueur qui m'ont permis d'approfondir ma réflexion et ont été essentielles lors de la rédaction de ce manuscrit.

Je souhaite exprimer ma profonde gratitude envers les rapporteurs de cette thèse, Dominique Leduc et Alexandre Vial pour leurs commentaires, remarques et conseils judicieux sur le manuscrit et lors de la soutenance. Merci également à Giancarlo Rizza d'avoir fait partie de ce jury et pour la collaboration que nous avons eu. Merci à Fabrice Gourbilleau qui, par son implication dans la vie de l'équipe, m'a permis de participer à de nombreuses conférences. Je retiendrai également les nombreux conseils dispensés au cours de ces trois ans.

Je tiens à remercier les personnes dont le soutien et la présence ont beaucoup compté. Merci à Pierre-Matthieu Anglade qui m'a souvent dépanné grâce à ses connaissances en informatique et a animé les pauses cafés avec ses jeux de mots. Merci aux enseignants, en particulier Sébastien Petit, Philippe Marie et Julien Gibelin, pour m'avoir fait confiance dans la réalisation des TP et des TD. Pour leur aide dans les tâches administratives, je voudrais remercier Delphine, Christiane et Lucile. Je voudrais également remercier les personnes avec qui je n'ai pas forcément travaillé mais que j'ai côtoyé tous les jours : Christophe, Cédric, Mickaël, Christian et plus généralement l'équipe NIMPH.

Je terminerai par les personnes extérieures au laboratoire mais qui ont eu un rôle important durant ces années. Je n'ai pas eu beaucoup l'occasion de leur dire, alors j'en profite ici pour exprimer un grand merci à mes parents qui m'ont toujours soutenu pendant ces longues études et m'ont toujours laissé libre de mes choix. Merci à ma sœur, qui je l'espère, sait aujourd'hui si je fais de la physique ou de la chimie. Merci à mes grands-parents, mon oncle et ma tante d'être venus à la soutenance et plus généralement à l'ensemble de ma famille. Parmi les amis je voudrais remercier Noémie qui a mis un peu de folie durant ces années et Julien pour nos premières années en sciences de la matière. Je remercie Pierre, Rémi, Fabien et Hélène pour les repas au RU le midi et le fameux "jeu de la carafe". Merci à Romain, après huit années on peut être fier, ça y est on est arrivé au bout ! Je remercie également mes beaux-parents pour leur sympathie et pour m'avoir accueilli à Caen pendant deux semaines.

Enfin mes derniers remerciements vont à Julia avec qui j'ai la chance de partager ma vie aujourd'hui. En quelques mots, forcément insuffisants, merci pour ton soutien, ton écoute et ta joie de vivre qui a su si bien me changer les idées quand j'en avais besoin. Merci d'être tel que tu es, pour les moments passés et à venir en ta compagnie.

Table des matières

Introduction générale	1
1 Etude bibliographique	5
1.1 Guides d'ondes	6
1.1.1 Les terres rares	7
1.1.2 Les nanograins de silicium	15
1.1.3 Couplage entre nanograins de silicium et terres rares .	21
1.1.4 Guides d'onde	25
1.2 Plasmons	26
1.2.1 Qu'est-ce qu'un plasmon ?	26
1.2.2 Approximation quasi-statique	29
1.2.3 Effets de retard	33
1.2.4 Résonance Fano	36
2 Modélisation numérique	41
2.1 Les équations de Maxwell	42
2.2 Algorithme de Yee	44
2.2.1 Schéma de Yee	45
2.2.2 Stabilité et dispersion numérique	48
2.3 Conditions aux limites absorbantes	50
2.3.1 Définition de la couche parfaitement adaptée	52
2.4 Les sources de champ électromagnétique	56
2.4.1 Source dure	56
2.4.2 Champ total/Champ diffusé	61
2.5 Amplitude des champs électromagnétiques	69

2.6	Milieux dispersifs et milieux à gain	72
2.6.1	Les métaux	73
2.6.2	Description électronique d'un milieu à gain	82
2.7	Bilan	88
3	Milieux à gain	89
3.1	Description du guide d'onde	91
3.1.1	Présentation générale	91
3.1.2	Les nanograins de silicium	91
3.1.3	Les ions erbium	94
3.1.4	Les ions néodyme	95
3.1.5	Évaluation du temps de calcul	97
3.2	Un nouvel algorithme de calcul	98
3.2.1	Schéma général	99
3.2.2	Détermination des populations des niveaux électroniques	103
3.2.3	Réduction du temps de calcul	103
3.3	Résultats	106
3.3.1	Cartes de champs	106
3.3.2	Carte de populations	109
3.3.3	Gain optique	113
3.4	Bilan et perspectives	117
4	Nanoparticules d'or	119
4.1	Nanoparticules d'or individuelles	120
4.1.1	Fabrication de nanoparticules et mesure EELS	120
4.1.2	Étude par la méthode ADE-FDTD	128
4.1.3	Vérification par un modèle analytique	141
4.2	Nanoparticules d'or en réseau	142
4.2.1	Expérience	144
4.2.2	Étude par la méthode DDA	146
4.3	Bilan du chapitre	151
	Conclusion générale	153

TABLE DES MATIÈRES

ix

A	Algorithme de Yee	157
B	Solution analytique	159
	Table des figures	161
	Bibliographie	169

Nomenclature

Liste des abréviations

ADE	Auxiliary differential equation
CMOS	Complementary metal oxyde semiconductor
DDA	discrete dipole approximation
EDFA	Erbium doped fiber amplifier
EDWA	Erbium-doped waveguide amplifier
EELS	Electron energy loss spectroscopy
Er	Erbium
FDTD	Finite-difference time-domain
HAADF	High-angle annular dark-field imaging
LSPR	Localized surface plasmon resonance
Nd	Néodyme
ng-Si	Nanograin de silicium
ng-Si:Er ³⁺	Matériau co-dopé avec des nanograins de silicium et des ions erbiums
ng-Si:Nd ³⁺	Matériau co-dopé avec des nanograins de silicium et des ions néodymes
PL	Photoluminescence
PML	Perfectly matched layer

SiO ₂	Silice
SPP	Surface plasmon polariton
TE	Mode transverse électrique
TF	Transformée de Fourier
TF/SF	Total field/Scattered field

Liste des sigles

α	Coefficient d'atténuation	(m ⁻¹)
β	Constante de propagation	(m ⁻¹)
Δt	Pas de temps	
Δx	Pas d'espace selon x	
Δy	Pas d'espace selon y	
Δz	Pas d'espace selon z	
δ	Profondeur de peau	(m ⁻¹)
$\frac{1}{\hbar\omega}\vec{E}\frac{d\vec{P}}{dt}$	Densité volumique de photons par unité de temps	(m ⁻³ .s ⁻¹)
\hbar	Constante de Planck réduite	(J.s)
μ	Perméabilité magnétique	(H.m ⁻¹)
μ_0	Perméabilité magnétique du vide	(H.m ⁻¹)
ω	Pulsation	(rad.s ⁻¹)
ω_p	Pulsation plasma	(rad.s ⁻¹)
σ_{abs}	Section efficace d'absorption	(cm ²)
σ_{diff}	Section efficace de diffusion	(cm ²)
σ_{ext}	Section efficace d'extinction	(cm ²)
\tilde{n}	Indice optique complexe	
ε	Permittivité diélectrique	(F.m ⁻¹)

ε_0	Permittivité diélectrique du vide	(F.m ⁻¹)
\vec{E}	Vecteur champ électrique	(V.m ⁻¹)
\vec{H}	Vecteur champ magnétique	(A.m ⁻¹)
\vec{k}	Vecteur d'onde	(rad.m ⁻¹)
\vec{P}	Vecteur polarisation	(C.m ⁻²)
\vec{R}	Vecteur de Poynting	(W.m ⁻²)
E	Energie	(J)
N_i	Population électronique par unité de volume d'un niveau i	(m ⁻³)
S	Nombre de Courant	
A	Absorbance	

Introduction générale

Les développements de la recherche scientifique ont permis de fabriquer et d'observer des matériaux à l'échelle du nanomètre. La miniaturisation des composants optiques est alors devenue un défi dans de nombreux domaines d'applications comme la photonique ou la plasmonique. Ces structures offrent la possibilité de contrôler le champ électromagnétique dans le domaine du visible ou du proche infra-rouge à des échelles de la longueur d'onde ou sub-longueur d'onde. Le passage d'un matériau d'un état dit "massif" à un état nanométrique modifie ses propriétés physiques notamment pas la modification de la structure électronique du matériau. Ce changement d'échelle est à la base de nouvelles applications qui utilisent les propriétés particulières des matériaux à l'échelle du nanomètre. Dans le domaine de l'optique, il est indispensable de caractériser les propriétés des nanostructures à bases de matériaux semi-conducteurs ou métalliques pour permettre le développement de nouvelles applications.

Le silicium à l'état massif, qui est un semi-conducteur à gap indirect, est un faible émetteur de lumière. La réduction de sa taille à des dimensions nanométriques permet de modifier sa structure électronique et conduit à un gap pseudo-direct. Les nanostructures de silicium possèdent alors une émission radiative dans le visible. Cependant l'intensité de luminescence des nanostructures de silicium reste trop faible pour permettre des applications. Il a alors été envisagé de coupler des nanograins de silicium avec des ions de terres rares pour permettre une émission de photons intenses allant de l'infrarouge à l'ultra-violet. Les perspectives d'applications vont de l'affichage au photovoltaïque en passant par la photonique sur silicium. En effet l'industrie de la micro-électronique arrive à une limite concernant la densité de transistors in-

tégrés sur une puce de silicium. La dimension caractéristique des transistors suit depuis les années 1970 la loi de Moore qui stipule que le nombre de transistors sur une puce de silicium double tous les deux ans. Cette intégration couplée à l'augmentation de fréquence d'horloge des systèmes électroniques a permis d'augmenter considérablement la vitesse de calcul des microprocesseurs. Cependant aujourd'hui la vitesse globale des microprocesseurs est limitée par la vitesse de transmission entre deux transistors qui s'effectue par un signal électrique porté par une ligne métallique. Remplacer le signal électrique par un signal optique permettrait d'augmenter la vitesse de transfert par l'utilisation d'une onde porteuse de fréquence plus importante. De plus cela supprimerait les problèmes de dissipation par effet Joule des connexions métalliques. C'est le domaine de la photonique sur silicium qui vise à intégrer des composants optiques sur un substrat de silicium. Les composants optiques doivent être compatibles avec la technologie de fabrication CMOS (*Complementary metal oxide semiconductor*), consommer très peu d'énergie et être très compacts. Les guides d'ondes planaires co-dopés avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares, compatibles avec la technologie CMOS, ont alors été proposés comme milieu à gain. Il reste à étudier les populations des niveaux électroniques et le gain optique atteignable.

L'or à l'état massif est un matériau inerte et jaune. A des dimensions de l'ordre du nanomètre ou de la dizaine de nanomètres l'or apparaît de couleur rouge et peut servir de catalyseur. Sans que les origines de leurs propriétés optiques soient comprises, les nanoparticules d'or ont été exploitées dès l'antiquité pour donner aux verres des couleurs rouges à partir de poudre métallique. De nos jours la coloration de verre par des nanoparticules d'or est encore utilisée pour produire des verres dit verres rubis à l'or comme par exemple la bouteille de parfum Fahrenheit. Les propriétés optiques d'une nanoparticule d'or sont dues aux oscillations collectives des électrons de conduction connues sous le terme de plasmon. Les énergies de résonances des électrons d'une nanoparticule d'or dépendent de sa taille, de sa forme ainsi que de la matrice environnante. Les études de nanoparticules d'or individuelles ont pu être réalisées grâce au développement de nouvelles méthodes de fabrication comme la nanolithographie ou la synthèse chimique et de caractérisation

comme la microscopie en champ proche optique (*SNOM*, *scanning near-field optical microscopy*) ou la spectroscopie des pertes d'énergies électroniques (*EELS*, *electron energy loss spectroscopy*).

Ce travail de thèse est basé sur la modélisation de l'interaction entre une onde électromagnétique et la matière à l'échelle nanométrique et a pour objectif de confronter une approche numérique à des résultats expérimentaux. Nous avons utilisé la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD) qui propose un schéma de discrétisation des équations de Maxwell basé sur l'algorithme de Yee [1]. C'est une méthode temporelle ce qui permet de connaître le champ électromagnétique à chaque instant en tout point de l'espace. Le code de calcul, développé en interne au laboratoire CIMAP, a bénéficié de nombreux développements au cours de cette thèse comme par exemple l'implémentation d'une source permettant de générer une onde plane ou encore l'accès à l'amplitude des champs électromagnétiques (EM) par une transformée de Fourier. Cette méthode est généraliste et peut être adaptée à de nombreux problèmes physiques. Elle est le point central de ce manuscrit et nous l'utiliserons dans deux domaines : la photonique et la plasmonique.

Ce manuscrit est constitué de 4 chapitres :

Le premier chapitre résume les principaux résultats de la littérature concernant les deux sujets développés ensuite dans ce manuscrit : les guides d'ondes co-dopés avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares et les plasmons.

Le second chapitre concerne la présentation de la méthode numérique que nous avons utilisée, à savoir la méthode ADE-FDTD. Nous y exposerons l'algorithme de Yee ainsi que les méthodes utilisées pour absorber le champ EM aux limites de la zone de calcul, générer une onde incidente ou encore de modéliser des milieux dispersifs. Ce sont là les prérequis que nous avons dû implémenter dans notre code de calcul afin de simuler un problème physique.

Le troisième chapitre porte sur les guides d'ondes dopés avec des nanograins de silicium et des ions terres rares (erbium ou néodyme). Les temps caractéristiques très différents du champ électromagnétique et des dopants présents dans les guides d'ondes nous ont amené à développer un nouvel al-

gorithme. Une comparaison du gain optique en fonction de la terre rare est présentée.

Le quatrième chapitre est consacré à la réponse optique de nanoparticules d'or individuelles et en réseau. Ces nanoparticules sont fabriquées expérimentalement par l'équipe de G. Rizza (LSI, école polytechnique) puis étudiées par spectroscopie de pertes d'énergies des électrons (EELS). Nous cherchons à comparer les résultats obtenus par EELS avec ceux obtenu par la méthode ADE-FDTD. Ce chapitre est aussi l'occasion d'aborder la réponse optique d'un réseau de nanoparticules d'or.

Chapitre 1

Etude bibliographique

Sommaire

1.1	Guides d'ondes	6
1.1.1	Les terres rares	7
1.1.2	Les nanograins de silicium	15
1.1.3	Couplage entre nanograins de silicium et terres rares	21
1.1.4	Guides d'onde	25
1.2	Plasmons	26
1.2.1	Qu'est-ce qu'un plasmon ?	26
1.2.2	Approximation quasi-statique	29
1.2.3	Effets de retard	33
1.2.4	Résonance Fano	36

Nous présentons dans ce chapitre une étude bibliographique sur les guides d'ondes dopés avec des ions de terres rares et des nanograins de silicium 1.1. Puis nous développons le concept de plasmons, et en particulier la résonance plasmonique de nanoparticules d'or 1.2.

1.1 Les guides d'ondes dopés avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares

De part leurs propriétés physiques, les terres rares sont l'un des enjeux du 21^e siècle. Elles sont utilisées dans de nombreux domaines pour leurs propriétés magnétiques et optiques : l'automobile pour les voitures hybrides et électriques, les énergies vertes pour la fabrication d'éoliennes mais aussi la santé pour l'imagerie par résonance magnétique. Nous développerons plus particulièrement leur utilisation dans les télécommunications optiques. Elles sont déjà exploitées industriellement pour la fabrication de téléviseurs LCD qui contiennent des ions europium divalents (Eu^{2+}), europium trivalents (Eu^{3+}) et terbium trivalents (Tb^{3+}) pour produire les couleurs primaires bleu, rouge et vert. Dans les télécommunications, des amplificateurs optiques à base de silice (*Erbium doped fiber amplifier*, *EDFA*) utilisent des ions erbium (Er^{3+}) afin de ré-amplifier la puissance d'un signal se propageant sur de grande distance [2]. Les terres rares sont aussi un important sujet de recherche, notamment dans le domaine du photovoltaïque. Leur utilisation dans la fabrication de cellules solaires à base de silicium pourrait permettre d'augmenter leur efficacité pour produire de l'électricité.

De nombreuses applications demandent des vitesses de transfert toujours plus élevées. L'industrie de la microélectronique envisage de remplacer les interconnexions électriques entre les différents composants électroniques par une connexion optique. L'intérêt d'utiliser un signal lumineux, à la place d'un signal électrique, est d'augmenter la vitesse de communication par l'utilisation d'une onde porteuse de fréquence plus importante (10^9 Hz contre 10^{15} Hz en optique). Le développement de cette technologie doit être compatible avec

la technologie du silicium qui est massivement utilisé en micro-électronique. La photonique sur silicium vise à intégrer des fonctions photoniques avec des circuits électroniques à l'échelle d'une plaquette de silicium (wafer). L'intérêt est d'utiliser la technologie silicium, qui est arrivée aujourd'hui à maturité, et la vitesse de communication d'un signal optique. Pour cela il faut que les composants optiques répondent à plusieurs critères : ils doivent être compatibles avec la technologie de fabrication CMOS (*Complementary metal oxide semiconductor*), consommer très peu d'énergie et être très compacts. L'effort de la recherche en photonique sur silicium porte sur ces critères.

Nous développerons le cas particulier des terres rares incluses dans une matrice de silice afin de réaliser un milieu à gain performant pouvant permettre la réalisation d'un laser ou d'un amplificateur optique. Pour cela les terres rares doivent être excitées soit par pompage optique avec des photons ou par excitation électrique par porteurs à partir d'électrodes soumises à une différences de potentiel (électroluminescence). Nous décrivons dans ce chapitre un autre moyen pour exciter les terres rares, à savoir l'utilisation de sensibilisateurs qui sont excités afin qu'ils transmettent leur énergie à la terre rare.

Nous présentons les propriétés générales des ions terres rares, puis nous développons en particulier les propriétés de l'erbium et du néodyme (paragraphe 1.1.1). Les caractéristiques physiques du silicium à des dimensions nanométriques seront exposées (1.1.2) avant d'étudier le mécanisme de couplage entre les nanograins de silicium et les ions terres rares, ce qui permet l'excitation indirecte de ces dernières (1.1.3).

1.1.1 Les terres rares

Les terres rares sont une famille de métaux allant du lanthane au lutécium, auxquels on associe l'yttrium et le scandium. Leur nom provient de leur découverte entre la fin du XVIII^e et du début du XIX^e siècle. « Terre » désigne à l'époque les oxydes réfractaires au feu, et « rare », parce que les chercheurs pensaient qu'il y en avait très peu sur Terre. Il s'est avéré que les terres rares les plus abondantes (Ce, Nd) présentent une concentration similaires à

d'autres métaux tel que le cuivre, le nickel ou encore le tungstène tandis que les moins abondantes (Tm, Lu) sont tout de même 200 fois plus fréquentes que l'or [3]. Néanmoins elles se trouvent rarement sous forme de gisement abondant mais plutôt dispersées dans de vastes filons et il est difficile de les séparer car elles présentent des propriétés chimiques très proches.

Configuration électronique

La configuration électronique des terres rares est généralement $[\text{Xe}]4f^n6s^2$ avec quelques cas $[\text{Xe}]4f^n5d^16s^2$ pour $1 < n < 14$. Leurs propriétés optiques particulières (absorption, émission...) vient du fait que la couche 4f, qui est une couche interne, est incomplète tandis que les couches externes 5s, 5p, 6s (et 5d sur certaines terres rares) sont complètement remplies. Nous rencontrons généralement les terres rares sous forme d'ions triplement ionisés lorsqu'elles sont dans une matrice, comme par exemple le silicium ou la silice. Par exemple la configuration électronique non ionisée de l'erbium (Er) est $[\text{Kr}]4d^{10}4f^{12}5s^25p^66s^2$ et celle du néodyme (Nd) $[\text{Kr}]4d^{10}4f^45s^25p^66s^2$. Dans une matrice ces deux terres rares perdent trois électrons et deviennent des ions erbium Er^{3+} et néodyme Nd^{3+} ayant respectivement pour configuration électronique $[\text{Kr}]4d^{10}4f^{11}5s^25p^6$ et $[\text{Kr}]4d^{10}4f^35s^25p^6$. Pour désigner les niveaux électroniques des ions de terres rares on utilise généralement une lettre X et deux nombres S et J : $^{2S+1}X_J$. La lettre X est associée au nombre quantique L qui est le moment angulaire orbital total. Le nombre S est le spin total de l'ensemble des électrons de l'ion, et l'indice à gauche $2S+1$ représente le nombre total possible d'orientations de spin de l'ion. L'indice J représente le moment cinétique total ($\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$). La dégénérescence d'une couche $4f^n$ est élevée et s'obtient par la combinaison suivante :

$$C_{14}^n = \frac{14!}{n!(14-n)!} \quad (1.1)$$

Pour un ion erbium (Er^{3+}) elle vaut 364 et pour un ion néodyme (Nd^{3+}) 1061. Divers effets permettent de lever cette dégénérescence et les principaux sont l'interaction coulombienne, l'interaction spin-orbite et le champ cristallin.

- L'interaction coulombienne, qui traduit l'interaction entre les électrons, a pour conséquence de lever partiellement la dégénérescence. Il y a alors plusieurs niveaux ^{2S+1}X chacun ayant une dégénérescence $(2L+1)(2S+1)$. Pour les ions Nd^{3+} et Er^{3+} , en appliquant les règles de Hund [4], cela amène aux termes spectroscopiques suivant : 4I ($L=6$) pour la couche $4f^3$ de Nd^{3+} et 4I ($L=6$) pour la couche $4f^{11}$ de Er^{3+} .
- L'interaction spin-orbite qui provient de l'interaction entre le moment orbital de l'électron et le moment magnétique associé au spin de l'électron. Cette interaction décompose chaque terme ^{2S+1}X en $^{2S+1}X_J$ dégénérés $2J+1$ fois. Chaque terme spectroscopique verra sa dégénérescence partiellement levée et donnera naissance à autant de niveaux que de valeurs possibles pour J ($|L-S| < J < L+S$).
- Le champ cristallin intervient lorsque l'ion est placé dans une matrice hôte. Dans ce cas les niveaux spectroscopiques se subdivisent en sous-niveaux Stark sous l'influence du champ électrique créé par la matrice. L'influence du champ cristallin dépend donc de l'environnement de la terre rare et de son site d'insertion.

Les effets de ces interactions sur les niveaux d'énergie d'un ion erbium Er^{3+} sont représentés figure 1.1. Dans le cas des ions terres rares trivalents (TR^{3+}) l'influence du champ cristallin est minime car les électrons de la couche $4f$ sont écrantés par les électrons des couches plus externes et complètes $5s^2$, $5p^6$ et $6s^2$. En effet insérées dans une matrice, les liaisons se forment avec les électrons des couches externes $5s$ et $5p$. Les niveaux d'énergies des terres rares dépendent donc peu de la matrice hôte. Dans le cas des ions Er^{3+} et Nd^{3+} , il est impossible de déterminer avec précision les sous-niveaux Stark à température ambiante. Dans le chapitre 3, nous négligerons la dégénérescence introduite par le champ cristallin et seul les niveaux énergétiques provenant des interactions coulombiennes et spin-orbite seront modélisés.

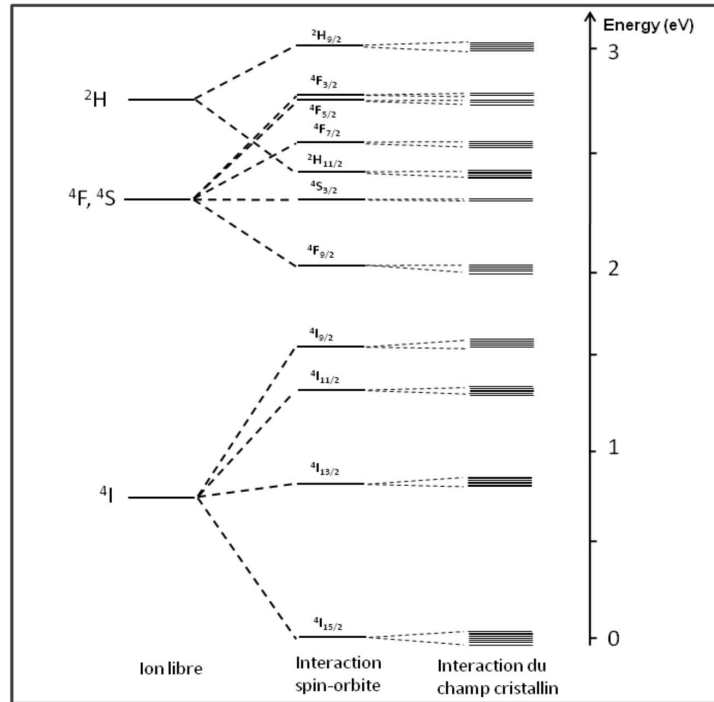


FIGURE 1.1 – Levée de dégénérescence successive des niveaux de Er^{3+} . Extrait de [5].

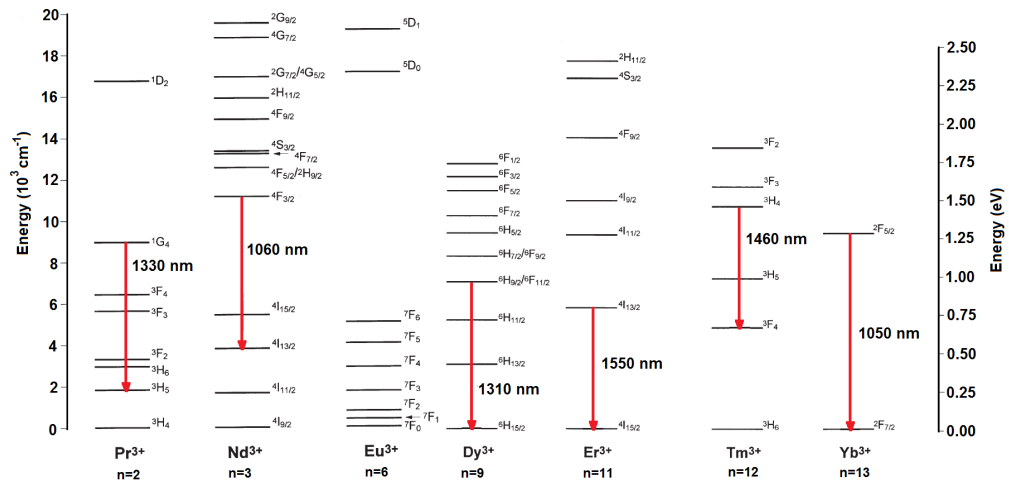


FIGURE 1.2 – Diagramme d'énergie de quelques ions terres rares. Les transitions radiatives les plus utilisées sont représentées. Figure adaptée de [6]

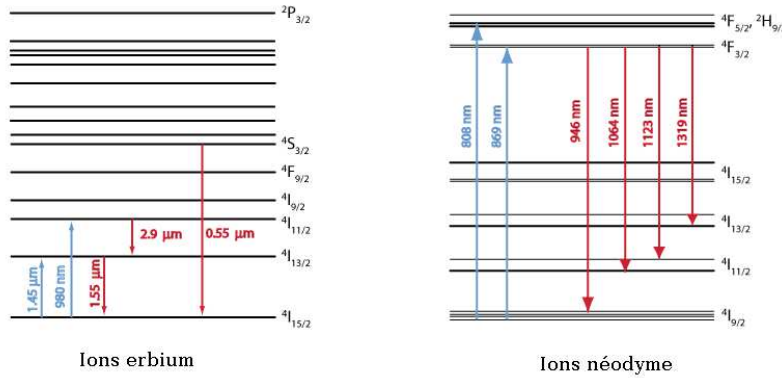


FIGURE 1.3 – Niveaux d'énergies avec les principales transitions des ions erbium (à gauche) et des ions néodyme (à droite)

Propriétés optiques

Depuis les années 80 de nombreuses équipes de recherches se sont intéressées à l'étude des semi-conducteurs dopés avec des ions terres rares trivalents pour leurs propriétés optiques. Les raies d'émissions de l'ensemble des terres rares permettent de couvrir un domaine spectral allant de l'infrarouge à l'ultraviolet [7]. La figure 1.2 présente les niveaux d'énergies, ainsi que les transitions les plus utilisées de quelques ions terres rares [6].

L'ion erbium présente plusieurs transitions radiatives et les principales correspondent aux longueurs d'ondes suivantes : 0,55 μm , 1,55 μm et 2,9 μm (figure 1.3). L'intérêt de la transition à 1,55 μm entre les niveaux $4I_{13/2}$ et $4I_{15/2}$ pour les télécommunications optiques provient de la faible absorption de la silice à cette longueur d'onde. Comme le montre la figure 1.4, l'absorption de la silice est minimum à la longueur d'onde de 1.55 μm et vaut 0,2 dB/km [8].

Depuis la fin des années 80 [9, 10] des amplificateurs optiques à base de fibres de silice dopées avec des ions erbium (*Erbium-doped fiber amplifier*, *EDFA* en anglais) ont été développés permettant l'amplification d'un signal à 1550 nm [11]. Les EDFA sont le plus souvent pompés à 980 nm car cette longueur d'onde correspond à la transition entre le niveau fondamental $4I_{15/2}$ et le niveau excité $4I_{11/2}$ de l'ion erbium. Une fois ce niveau excité une tran-

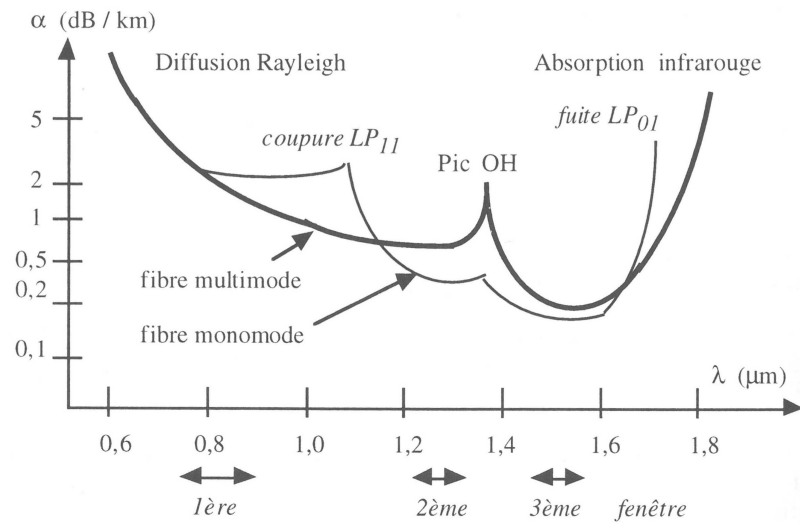


FIGURE 1.4 – Pertes, en dB/km, de la silice. Le minimum se situe à environ 0,2 dB/cm pour une longueur d'onde de 1,55 μm . Extrait de [8].

sition non radiative et rapide amène l'ion Er^{3+} dans l'état $^4I_{13/2}$, permettant une désexcitation radiative à 1,54 μm vers le niveau fondamental. Cependant la longueur de ces fibres doit atteindre entre 20 et 30 m afin d'avoir un gain de 30 dB. En effet les interactions non radiatives entre les ions Er^{3+} , notamment dues aux relaxations croisées pour des concentrations trop importantes, et surtout la faible section efficace d'excitation des ions Er^{3+} limitent le processus d'amplification [12]. Des systèmes plus compacts ont été développés comme les EDWA (*Erbium-doped waveguide amplifier*) qui permettent de réduire la longueur tout en assurant un gain important [13]. En fonction de la composition du guide d'onde, différentes valeurs de gain peuvent être atteintes. Un verre phosphate co-dopé avec des ions ytterbium permet d'atteindre un gain supérieur à 1.8 dB/cm. Cependant pour des applications en micro-électronique ces longueurs restent trop importantes.

Le néodyme est l'autre terre rare qui a intéressé la communauté scientifique et que nous étudierons dans le chapitre 3. Nd^{3+} présente plusieurs transitions radiatives à 946 nm, 1064 nm, 1123 nm et 1319 nm (figure 1.3). Par exemple cette terre rare est couramment utilisée dans les lasers Nd-YAG (*neodymium-doped doped yttrium aluminium garnet*) qui émettent à une lon-

gueur d'onde de 1064 nm. La transition entre les niveaux excités donneur $^4F_{3/2}$ et accepteur $^4I_{13/2}$ à 1064 nm présente un rapport d'embranchement élevé ($> 50\%$). L'avantage d'une transition entre deux niveaux excités est de réduire la probabilité de réabsorption de photons car le nombre de photons dans le niveau accepteur est faible ce qui permet d'éliminer un facteur limitant du gain.

Les matrices hôtes

Pour des applications dans les télécommunications optiques et l'opto-électronique il est nécessaire que la matrice hôte soit à base de silicium afin d'assurer une compatibilité avec la technologie existante. Nous détaillons les propriétés des ions Er^{3+} et Nd^{3+} dans deux matrices hôtes : la silice et le silicium. Nous nous concentrons sur les propriétés de l'erbium dans ces deux matrices car cette terre rare a été plus étudiée que le néodyme.

Dans une matrice de silicium l'excitation de l'erbium se fait de manière indirecte par interaction avec des porteurs photogénérés dans la matrice. Cela a été montré par Polman *et al* [14] en observant la photoluminescence de l'erbium à 1535 nm en fonction de la longueur d'onde de pompe. Les mesures ont révélé que pour du silicium dopé avec de l'erbium aucun pic n'était visible pour une excitation à 980 nm (correspondant à la transition entre le niveau fondamental $^4I_{15/2}$ et le niveau excité $^4I_{11/2}$). Cela met en évidence une excitation indirecte de l'erbium et c'est donc une section efficace *effective* d'absorption qui est mesurée et qui vaut environ $3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$ [15]. Malgré cette section efficace élevée, la photoluminescence de l'erbium dans cette matrice reste faible à température ambiante, ce qui est dû à plusieurs processus. Tout d'abord Er^{3+} est peu soluble et la concentration par implantation ionique ne dépasse pas $3 \cdot 10^{17} \text{ at.cm}^{-3}$ [15]. Cela favorise l'agglomération des ions erbium et permet des relaxations croisées entre ces ions ce qui limite la photoluminescence. Deux autres phénomènes sont aussi à prendre en compte [16]. Le premier est un processus de relaxation de type Auger non négligeable : un ion Er^{3+} excité peut interagir de manière non radiative avec une paire électron-trou du silicium [17] (figure 1.5). Le second est un transfert

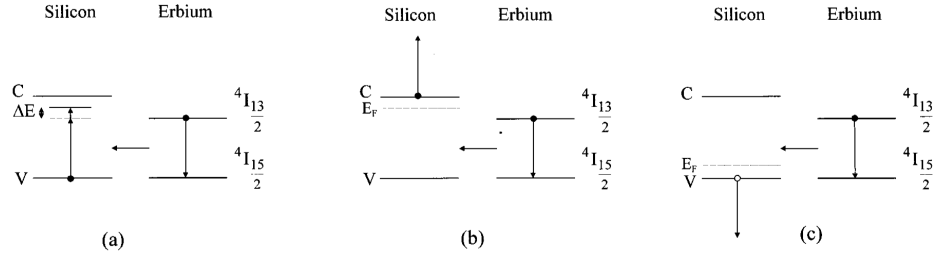


FIGURE 1.5 – Représentation schématique des différentes désexcitations non radiatives de l'erbium dans une matrice de silicium : (a) Transfert d'énergie inverse, (b) Relaxation de type Auger avec des électrons libres et (c) avec des trous libres. C et V sont respectivement la bande de conduction et de valence du silicium et E_f le niveau de Fermi. Adapté de [15].

d'énergie inverse, c'est-à-dire de Er^{3+} vers le silicium [18], car l'implantation des ions erbium a introduit un niveau dans la bande interdite, à 0.15 eV de la bande de conduction du silicium. Par l'intermédiaire de phonons d'énergie ΔE (figure 1.5), les ions erbium peuvent alors exciter le silicium en se désexcitant. Ces processus sont représentés schématiquement sur la figure 1.5. Des études ont montré que la présence d'oxygène permet d'augmenter le signal de photoluminescence [19]. La configuration la plus favorable est alors un ion Er^{3+} entouré de 6 atomes d'oxygène [20, 21].

Dans la silice l'excitation de l'erbium se fait par absorption directe d'un photon à 980 nm permettant de créer une paire électron-trou (appelée aussi exciton) entre les niveaux $^4I_{15/2}$ et $^4I_{11/2}$. Cependant la section efficace d'absorption directe est faible (10^{-20} cm^2) ce qui nécessite une forte puissance de pompe [18]. De plus, dans cette matrice les ions Er^{3+} ont une solubilité du même ordre de grandeur que dans le silicium ($10^{18} \text{ at.cm}^{-3}$). Ces deux facteurs expliquent que la luminescence de l'erbium à $1,55 \mu\text{m}$ est faible. En l'absence d'agglomération des ions erbium, il a été montré [22] que l'ion erbium occupe le centre d'un site octaédrique d'atomes d'oxygène ce qui favorise son activation optique.

Pour avoir une section efficace d'absorption élevée et limiter les désexcitations non radiatives de la terre rare, il a été proposé d'introduire des

nanograins de silicium dans une matrice de silice [23–25]. Les nanograins de silicium jouent le rôle de sensibilisateurs en transférant leur énergie aux ions terres rares. Ils présentent une section efficace d'absorption de l'ordre de 10^{-16} cm^2 (à 488 nm) ainsi qu'une bonne probabilité de transfert aux ions terres rares [26,27]. Nous pouvons noter que d'autres sensibilisateurs existent tels que les ions métalliques ou les complexes organiques [28]. Nous détaillons maintenant les caractéristiques physiques des nanograins de silicium.

1.1.2 Les nanograins de silicium

Le silicium est aujourd'hui le matériau le plus utilisé dans le domaine de la microélectronique car il est bon marché, abondant et sa technologie est maîtrisée. Le silicium massif est un semi-conducteur à gap indirect. La figure 1.6 présente la structure de bande d'un semi-conducteur à gap direct, le phosphore d'indium (InP), et à gap indirect, le silicium (Si). E est l'énergie de l'électron ou du trou et \vec{k} le vecteur d'onde. Dans un semi-conducteur les bandes de valence et de conduction sont séparées par une bande interdite. Lorsque le maximum de bande de valence et le minimum de la bande de conduction se situent à une même valeur du vecteur d'onde k sur le diagramme $E(k)$, il s'agit d'un semi-conducteur à gap direct. En revanche lorsqu'ils sont décalés il s'agit d'un semi-conducteur à gap indirect.

Dans le cas du silicium, la recombinaison d'un exciton nécessite l'absorption ou l'émission de phonons permettant d'assurer la conservation du vecteur d'onde. Les interactions entre l'électron, le trou et les phonons sont peu probables ce qui conduit à augmenter la durée de vie radiative de l'exciton et amène un rendement de luminescence faible. De plus l'énergie de la bande interdite est de 1,11 eV à 300 K [30] ce qui correspond à des émissions infrarouges et ne convient pas pour des applications opto-électroniques dans le visible.

Silicium poreux

En 1990 L.T. Canham [31] met en évidence une intense bande de luminescence dans le visible et à température ambiante du silicium poreux.

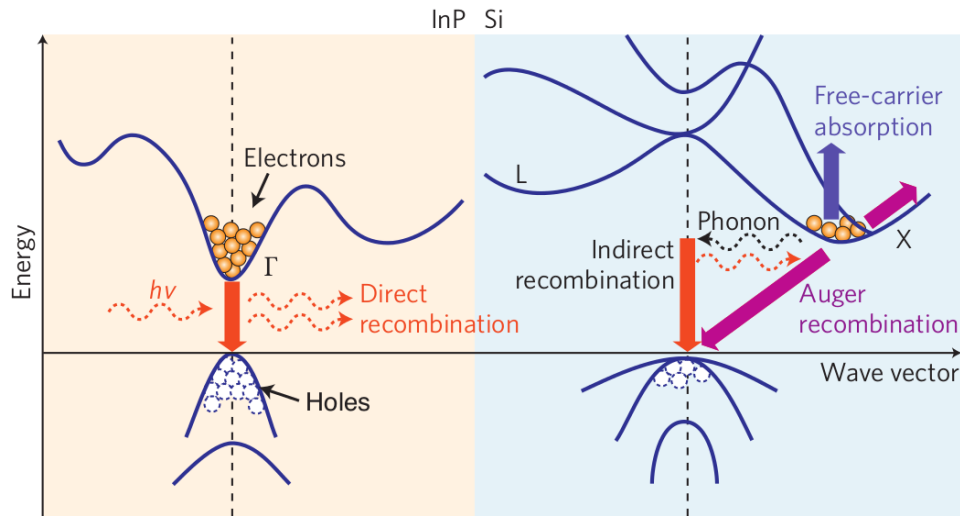


FIGURE 1.6 – Structure de bandes de 2 semiconducteurs à gap direct (InP) et à gap indirect (Si). Extrait de [29].

L'explication proposée est le confinement quantique des porteurs de charge dans le silicium qui a des dimensions réduites. En effet la théorie prévoit une augmentation du gap, ainsi qu'un accroissement du taux de recombinaison radiative, lorsque la taille des agrégats de silicium diminue [32,33].

La figure 1.7 présente le spectre de photoluminescence (PL) du silicium poreux en fonction de la durée du traitement chimique qui agit directement sur la porosité du silicium. Nous constatons un déplacement du pic de PL du proche infra-rouge vers le domaine visible. L'effet de taille influence le confinement des porteurs de charges, et la diminution à des dimensions nanométriques amène à un étalement de la fonction d'onde de l'exciton dans l'espace de k . Certaines règles de sélection sont ainsi levées, et une transition directe bande à bande sans nécessiter de phonons devient plus probable.

Nanostructures de silicium

Le silicium poreux a l'inconvénient de s'oxyder à l'air libre et présente de faibles résistance mécanique et thermique. Pour pallier ces défauts, trois types de nanostructures de silicium ont été développés :

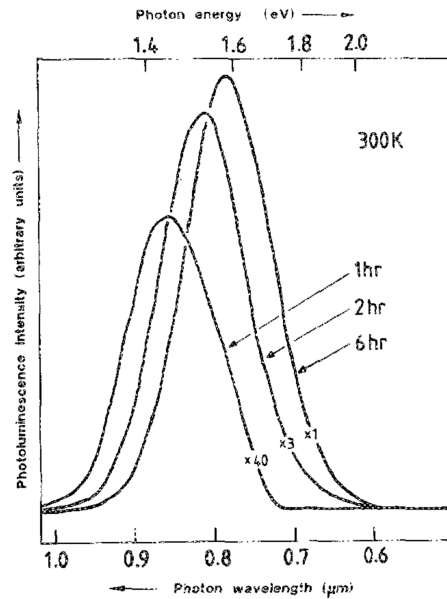


FIGURE 1.7 – Spectre de luminescence du silicium poreux en fonction de la durée du traitement chimique. Extrait de [31].

- Les structures de type planaires (2D) : confinement dans une direction de l'espace des porteurs de charges. Par une technique de dépôt il est possible d'obtenir une structure planaire en alternant des couches de Si et SiO₂ [34].
- Les structures de type filaires (1D) : confinement dans deux directions de l'espace des porteurs de charges. Parmi les techniques de fabrication on peut citer le mécanisme vapeur-liquide-solide qui permet la croissance d'un semi-conducteur. L'utilisation d'un catalyseur d'or est alors nécessaire [35, 36].
- Les structures de type boîte ou grains quantiques (0D) : confinement dans trois directions de l'espace des porteurs de charges. Ces structures sont fabriquées par des techniques de dépôts [37].

La figure 1.8 présente les trois types de nanostructures. 2D, 1D et 0D font référence au nombre de dimensions où les porteurs de charges ne sont pas confinés. Sur cette figure est aussi indiqué le rapport entre la surface et le volume (STV) qui montre l'augmentation du rapport STV entre une

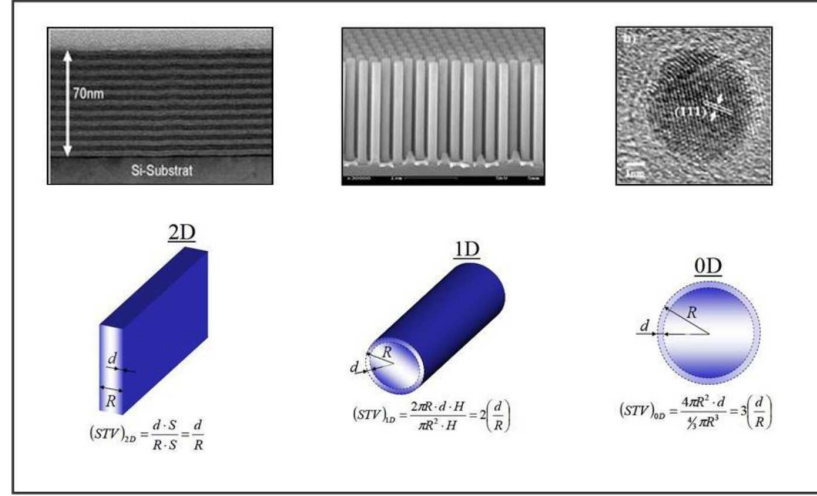


FIGURE 1.8 – Trois différents types de nanostructures de silicium. Puits quantique (2D), Fil quantique (1D) et boîte quantique (0D). Extrait de [5]

structure planaire et une boîte quantique. Ainsi les conséquences de l'environnement chimique sur les propriétés optiques du silicium pour une boîte quantique seront plus importantes que pour une structure planaire [38, 39]. Nous traitons par la suite uniquement les structures de type boîte quantique : les nanograins de silicium.

Le passage du silicium massif au silicium à l'échelle nanométrique a deux principales conséquences qui sont représentées sur la figure 1.9 :

- Les fonctions d'onde des porteurs de charge s'élargissent ce qui augmente la probabilité de recombinaison radiative. En effet les porteurs étant plus confinés spatialement, si l'on reprend le principe d'incertitude d'Heisenberg ($\Delta x \Delta p \simeq \hbar$ avec $p = \hbar k$), l'incertitude sur l'espace des vecteurs d'onde tend à augmenter lorsque la taille du système diminue. Cet étalement des fonctions d'onde dans l'espace des k conduit à augmenter les probabilités de recombinaison radiatives. On parle alors de gap "pseudo-direct".
- L'énergie du gap optique (la largeur de la bande interdite) augmente lorsque la taille nanométrique diminue. Nous pouvons le comprendre en prenant l'exemple simple d'un puits de potentiel infini à une dimension de largeur a . Les niveaux d'énergies accessibles sont donnés

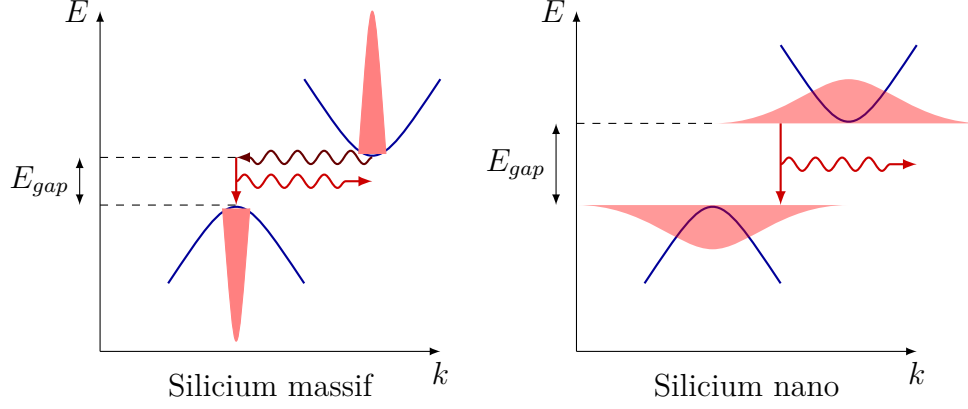


FIGURE 1.9 – Effets du confinement quantique : Augmentation de l'énergie du gap et élargissement des fonctions d'ondes des porteurs de charges

par :

$$E_n = \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2ma^2} \quad (1.2)$$

La différence d'énergie entre l'état fondamental ($n = 0$) et l'état excité ($n = 1$) augmente lorsque le diamètre a du puits diminue. La conséquence de cette augmentation de gap optique est une émission de photons d'énergie plus élevées.

La figure 1.10 présente l'énergie du gap en fonction de la taille des grains de silicium. On remarque que lorsque le diamètre du grain diminue l'énergie du gap augmente. Delerue *et al* ont proposé un modèle semi-empirique permettant d'obtenir une approximation de l'énergie du gap optique E_{gap} en fonction du diamètre d des nanograins de silicium [32] :

$$E_{gap} = E_0 + \frac{3,73}{d^{1.39}} \quad (1.3)$$

où E_0 est l'énergie du gap du silicium massif. Le gap optique du silicium reste principalement entre 1,4 et 2,5 eV, ce qui correspond à une longueur d'onde comprise entre 500 et 900 nm (figure 1.10). Afin de couvrir une bande spectrale plus large, la recherche s'est portée sur l'introduction d'impuretés, comme des ions terres rares, dans des matrices comme SiO_2 ou Si_3N_4 contenant des nanograins de silicium. Après avoir présenté séparément les terres

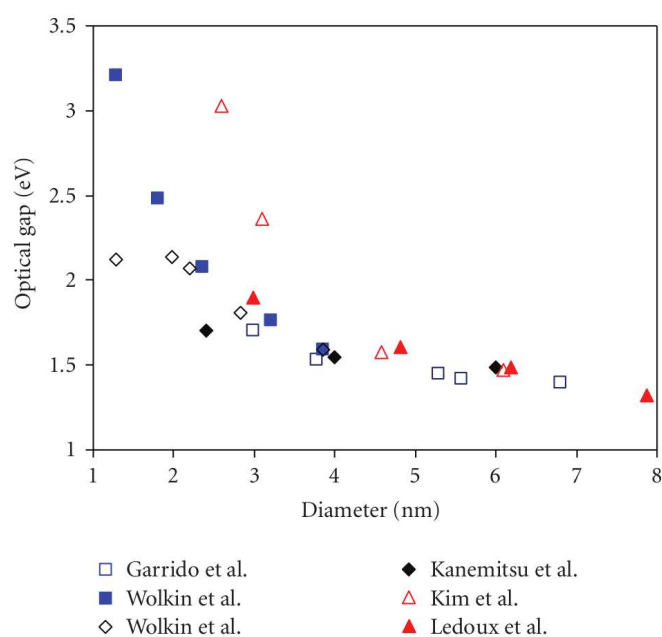


FIGURE 1.10 – Valeur du gap optique en fonction du diamètre des nanograins de silicium. Garrido et al [40], Wolkin et al [41], Kanemitsu et al [42], Kim et al [43], Ledoux et al [44]. Extrait de [45]

rares et les nanograins de silicium, nous développons l'idée du couplage entre ces deux espèces.

1.1.3 Couplage entre nanograins de silicium et terres rares

La photoluminescence des ions de terres rares dans une matrice de silicium est limitée par les désexcitations non radiatives (transfert d'énergie inverse et relaxation de type Auger) qui sont liées à l'interaction entre les porteurs libres du silicium et le niveau $^4I_{13/2}$ dans le cas de l'erbium. Par rapport au silicium massif, un nanograin de silicium a une énergie de gap plus importante et l'écart entre le niveau $^4I_{13/2}$ des ions Er^{3+} et le bas de bande de conduction du silicium augmente ce qui permet une réduction du processus d'énergie inverse. De plus une augmentation du gap permet de diminuer la concentration de porteurs libres ce qui limite les relaxations de type Auger. Une étude de Priolo *et al* a montré que les désexcitations non radiatives dans une matrice de silice contenant des nanograins de silicium sont pratiquement inexistantes [46].

Expérimentalement, Kenyon *et al* [47] ont été les premiers à montrer une augmentation de l'excitation effective des ions Er^{3+} lorsqu'ils sont insérés dans une matrice de SiO_2 contenant des nanograins de silicium par rapport à une matrice de SiO_2 . Fujii *et al* [23] ont attribué cela à un transfert d'énergie entre les nanograins de silicium et le niveau $^4I_{9/2}$ des ions Er^{3+} qui se désexcite ensuite de manière non radiative vers le niveau $^4I_{13/2}$ qui lui-même se désexcite vers le niveau fondamental en émettant un photon à $1,55 \mu\text{m}$. Par la suite d'autres travaux [48–50] ont démontré cette excitation indirecte des ions Er^{3+} par l'excitation préalable des nanograins de silicium. Des mesures de photoluminescence (PL) ont été faites en l'absence d'erbium et ont montré un pic de PL à 800 nm attribué aux nanograins de silicium [51]. L'intensité de ce pic diminue lorsque la concentration en ions Er^{3+} augmente ce qui met en évidence le couplage et un transfert d'énergie entre les nanograins de silicium et les ions erbium.

La nature des nanograins de silicium, amorphe ou cristallin, ne semble pas être un facteur important pour la luminescence de l'erbium [52]. En

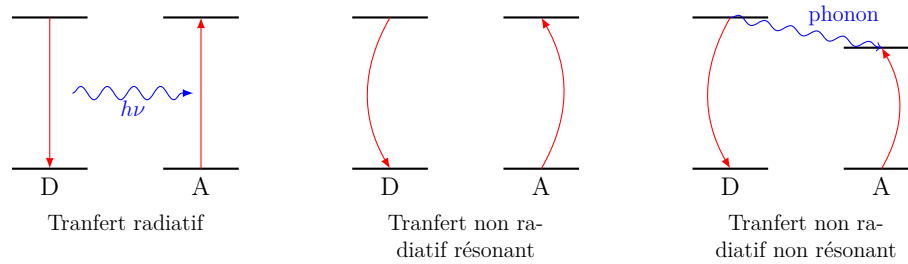


FIGURE 1.11 – Schéma des différents type de transfert entre un donneur D et un accepteur A. Adapté de [57]

effet, différentes études ont montré un transfert d'énergie efficace lorsque les nanograins de silicium étaient cristallisés [53, 54] ou amorphes [55].

L'intérêt d'un co-dopage d'une matrice de silice avec des nanograins de silicium et des ions terre rare est de pouvoir augmenter la section efficace d'excitation de ces derniers. On parle alors de section efficace effective car l'excitation n'est pas directe. Cela permet d'augmenter la section efficace effective de l'erbium de 4 ordres de grandeurs (jusqu'à 10^{-16} cm^2 [56]) par rapport à une matrice de silice dopée uniquement avec des ions de terre rare. Pour comprendre cette augmentation de section efficace, intéressons-nous aux différents types de transfert entre un donneur et un accepteur.

Il existe trois types de transfert d'énergie entre un donneur D et un accepteur A [57] (figure 1.11) :

- Le transfert d'énergie radiatif et résonant où le nanograin de silicium, préalablement excité, se désexcite en émettant un photon. Dans ce cas l'ion terre rare doit posséder une transition entre deux niveaux à la même énergie que l'énergie de recombinaison électron-trou du nanograin de silicium.
- Le transfert d'énergie non radiatif et résonant, où l'excitation de la terre rare s'effectue sans émission de photon.
- Le transfert d'énergie non radiatif et non résonant, où l'excitation de la terre rare s'effectue sans émission de photon. Ce type de transfert est rendu possible par l'émission de phonons afin de respecter la conservation d'énergie.

Il a été montré que le couplage entre les nanograins de silicium et les ions

erbium est non radiatif [57]. Trois mécanismes d'interactions sont alors envisagés : l'interaction magnétique, l'interaction électrique et enfin l'interaction d'échange. Pour les terres rares l'interaction magnétique peut être négligée devant l'interaction électrique [57]. Les deux autres mécanismes d'interactions sont encore discutés. Une partie des auteurs privilégie une interaction de type échange [49, 58] et une autre privilégie une interaction électrique de type dipôle-dipôle [48, 59]. Nous développons ci après ces deux derniers types d'interactions.

Interaction de type échange

L'interaction de type échange (ou encore de Dexter [60]) est possible lorsqu'une terre rare est assez proche d'un nanograin de silicium pour que leurs nuages électroniques se recouvrent. La probabilité P de transfert d'énergie est fonction de la distance x entre les deux éléments :

$$P \propto \exp\left(-\frac{x}{x_0}\right) \quad (1.4)$$

où x_0 est une distance caractéristique de l'interaction. Cette distance a été évaluée à environ $0,4 - 0,5$ nm [49, 61] dans le cas de ng-Si amorphe et à 2-3 nm dans le cas de ng-Si cristallin [49]. Dans le cas d'une interaction de type échange, il est donc nécessaire d'obtenir une densité volumique de ng-Si très élevée de manière à obtenir des distances très courtes entre les nanograins de silicium et les ions terres rares pour favoriser le transfert.

Interaction de type électrique

Dans le cas d'une interaction électrostatique de type dipôle-dipôle (connue également sous l'acronyme FRET pour (*Förster resonance energy transfer*), le transfert d'énergie se fait par interaction coulombienne, c'est-à-dire que l'énergie est transférée par résonance : l'exciton créé dans le nanograin de silicium induit un champ électrique oscillant qui entre en résonance avec un dipôle formé par une paire électron trou entre deux niveaux de la terre rare.

La probabilité P de transfert est alors proportionnelle à :

$$P \propto \left(\frac{R_0}{R}\right)^6 \quad (1.5)$$

où R_0 est le rayon de Förster, qui correspond à la distance ng-Si/terres rares pour laquelle l'efficacité du transfert d'énergie est de 50%. Pour qu'un transfert de type Förster puisse avoir lieu, le spectre d'émission du donneur doit recouvrir, au moins partiellement, le spectre d'absorption de l'accepteur. La conséquence d'une interaction électrique est une diminution de l'intensité de fluorescence et du temps de vie des nanograins de silicium ainsi qu'une augmentation de la luminescence des ions terres rares.

Modélisation du transfert

Le mécanisme de transfert entre les nanograins de silicium et les ions terres rares n'est pas identifié, certaines études privilégient l'interaction de type échange [49, 58] et d'autres l'interaction de type dipôle-dipôle [59, 62]. Par la suite, nous modélisons donc le transfert d'énergie par un coefficient K , phénoménologique, qui doit être déterminé expérimentalement. Ainsi les différents types d'interaction sont pris en compte dans la valeur de K . Ce coefficient intervient dans les équations des niveaux de populations des ions terres rares et des nanograins de silicium. Si nous appelons N_d^* la population du niveau excité du donneur et N_a la population du niveau fondamental de l'accepteur alors il est nécessaire d'ajouter un terme d'échange entre donneur et accepteur du type $KN_d^*N_a$ dans les équations de populations. Le coefficient de transfert K s'exprime en $\text{cm}^3.\text{s}^{-1}$. Des études ont évalué ce coefficient pour le couplage entre les nanograins de silicium et les ions erbium entre $2.10^{-14} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ et $3.10^{-15} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ [63, 64]. En revanche nous n'avons pas trouvé de travaux étudiant le coefficient de transfert entre les nanograins de silicium et les ions néodyme.

1.1.4 Guides d'onde

L'interaction entre les nanograins de silicium et les ions terres rares peut être utilisée afin d'amplifier un signal. Pour cela il est nécessaire de créer les conditions pour guider ce signal. Parmi les dispositifs qui permettent de guider la lumière, comme les fibres optiques, nous nous intéressons aux guides d'onde planaires. Ceux que nous étudions dans le chapitre 3 sont constitués d'un substrat de silice, d'une couche dite active contenant de la silice enrichie en silicium et les ions terres rares, et d'un ruban de silice. La couche active est utilisée pour guider le signal ce qui implique qu'elle doit posséder un indice optique plus élevé que les couches qui l'entourent. Elle est fabriquée par pulvérisation cathodique magnétron RF (*RF magnetron sputtering*) au laboratoire CIMAP [54,65]. Cette méthode de fabrication permet d'obtenir des couches de silice enrichies en silicium et ions terres rares. Tous les détails de cette technique de fabrication pourront être trouvés dans la littérature [66–68].

Notre travail, développé dans le chapitre 3, consiste à étudier le gain optique pouvant être obtenu avec le guide d'onde planaire présenté ci-dessus. La longueur d'onde du signal que l'on propage à l'intérieur de la couche active, pour être amplifiée, doit correspondre à une transition radiative de la terre rare. L'excitation des terres rares, afin de réaliser une inversion de population et autoriser le processus d'émission stimulée, sera effectuée par l'intermédiaire des nanograins de silicium.

1.2 Plasmons

Les matériaux nanostructurés de type métallique, semi-conducteur ou isolant présentent des dimensions de l'ordre du nanomètre dans 1, 2 ou 3 dimensions de l'espace. Leurs propriétés optiques peuvent différer de celle des matériaux dits massifs car ils possèdent un rapport "surface sur volume" élevé et une taille qui est inférieure ou comparable à la longueur d'onde. Nous traiterons le cas de nanoparticules métalliques, en particulier l'or et l'argent qui sont les deux métaux nobles les plus étudiés. Nous présenterons de manière générale la notion de plasmon (1.2.1) puis nous utiliserons une approche quasi-statique permettant de calculer analytiquement les sections efficaces d'absorption de diffusion et d'extinction d'une nanosphère métallique (1.2.2). Cette approche est toutefois limitée à des tailles de nanosphères très inférieures à la longueur d'onde. La description d'une nanosphère dont la taille est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde nécessite d'inclure des effets de retards (1.2.3). Enfin nous présenterons les résonances Fano qui peuvent s'obtenir en plasmonique par un réseau de nanoparticules métalliques (1.2.4).

1.2.1 Qu'est-ce qu'un plasmon ?

Les métaux présentent en général deux types d'électrons : ceux de cœur (ou de valence) et ceux de la bande de conduction. En première approximation, dans le visible et l'infrarouge, les électrons de conduction des métaux peuvent être considérés comme libres, ce qui est l'hypothèse introduite par le modèle de Drude. Le métal peut alors être vu comme un plasma, c'est-à-dire constitué par un ensemble d'ions chargés positivement, considérés immobiles, et d'un gaz d'électrons libres chargés négativement. L'interaction entre une onde électromagnétique et le métal va alors induire un déplacement collectif des électrons de conduction du métal. On appelle plasmon l'excitation collective du gaz d'électrons. La pulsation propre d'oscillation d'un gaz d'électrons est appelée pulsation plasma, ω_p ou encore pulsation de Langmuir. La pulsation plasma est définie en fonction du nombre d'électrons de conduction par unité de volume n_e , de la charge élémentaire e , de la masse de l'électron m_e

et de la permittivité du vide ϵ_0 :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (1.6)$$

Une onde électromagnétique de fréquence inférieure à la pulsation plasma située dans le visible/proche infra-rouge est réfléchiée et absorbée car les électrons oscillent à la fréquence de l'onde. Pour une onde électromagnétique de fréquence supérieure à la pulsation plasma, celle-ci est transmise car les électrons n'oscillent pas assez rapidement pour l'écranter. Pour l'or et l'argent la pulsation plasma est située autour de 9 eV [69] ce qui rend ces métaux transparents dans les rayons X.

Suivant le type de confinement, dans 1, 2 ou 3 dimensions, il existe dans la littérature plusieurs termes qu'il convient de détailler. Les plasmons dits de surface (*surface plasmons*, *SP*) sont confinés à l'interface entre un métal et un diélectrique. De manière générale, un polariton est une quasi-particule modélisant l'excitation combinée d'un photon et d'une autre particule [70]. Par exemple il existe des phonon-polariton (un photon en interaction avec une vibration du réseau) ou encore des excitons-polaritons (un photon en interaction avec une paire électron-trou). Les plasmons polaritons de surfaces (*Surface plasmon polariton*, *SPP*) sont donc l'excitation combinée d'un plasmon de surface et d'un photon [71]. Dans le domaine optique la formation d'un SPP correspond à une onde électromagnétique qui se propage le long d'une interface métal/diélectrique avec une amplitude qui décroît exponentiellement selon une direction perpendiculaire de part et d'autre de l'interface (figure 1.12). L'onde ainsi créée ne peut pas pénétrer en profondeur dans le métal et reste confinée en surface. La longueur d'onde effective associée au SPP peut être inférieure à la longueur d'onde du champ électromagnétique utilisée pour créer le SPP. Par conséquent cela permet de confiner et propager le champ électromagnétique à des dimensions inférieures à la longueur d'onde ce qui amène à deux propriétés intéressantes pour des applications : il est possible de générer, guider et moduler un champ électromagnétique [72, 73] à des dimensions inférieures à celles imposées par les limites de diffraction et l'intensité du champ peut atteindre de fortes valeurs dans un petit volume.

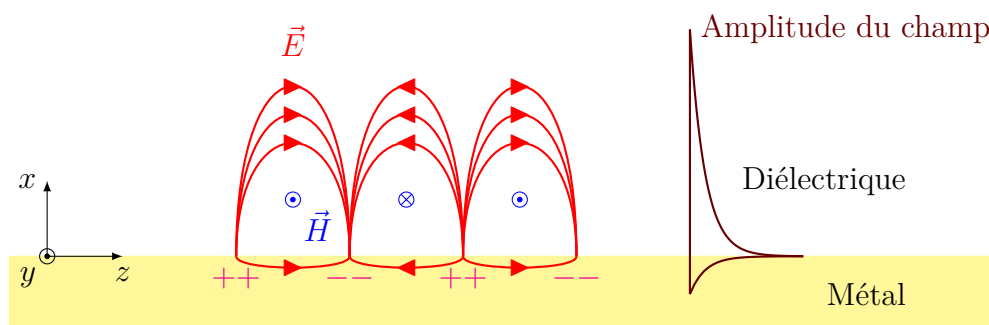


FIGURE 1.12 – Représentation schématique des champs \vec{E} et \vec{H} se propageant le long d’une interface métal/diélectrique. Les oscillations de charges sont indiquées (+ et -) ainsi que la dépendance exponentielle de l’intensité du champ électromagnétique en fonction de la distance à l’interface (sur la droite).

Les applications des SPP sont nombreuses et interviennent dans plusieurs domaines tels que la diffusion Raman, la médecine, les bio-capteurs optiques, ou encore les télécommunications optiques [74, 75]. Parmi les différentes perspectives d’application, les SPP pourraient être utilisés dans des circuits intégrés électroniques permettant d’augmenter la vitesse de transmission, par rapport à une transmission électrique, entre deux points du circuit [76].

Enfin il existe un type d’onde stationnaire à l’interface entre un métal et un diélectrique, comme les SPP mais sans propagation : les plasmons de surfaces localisés (*Localized surface plasmon resonance, LSPR*). Dans ce cas l’interaction se fait avec des nanostructures métalliques, de type boîte quantique, présentant des dimensions de l’ordre de la dizaine ou centaine de nanomètres dans les trois directions de l’espace. Les caractéristiques de nanoparticules, comme la taille, la forme, la composition, influent sur la fréquence de résonance du plasmon de surface localisé. Beaucoup de métaux ont leur fréquence de résonance dans l’UV (par exemple le plomb, le mercure, la cadmium...). La majorité des études sur les plasmons de surface localisés se concentrent sur deux métaux nobles, l’or (Au) et l’argent (Ag) car leur fréquence de résonance se situe dans le visible. L’introduction de nanoparticules métalliques dans des céramiques ou des verres est une technique utilisée depuis l’antiquité. L’un des exemples le plus célèbre est la coupe de



FIGURE 1.13 – La coupe de lycurgue sous deux éclairage différents : en réflexion (à gauche) et en transmission (à droite)

Lycurgue (voir figure 1.13), qui date du IV siècle après JC. A la lumière du jour la coupe paraît verte (lumière réfléchiée), mais si on place une source de lumière à l'intérieur de la coupe, celle ci devient rouge (lumière transmise). Cette particularité est due a des nanoparticules métalliques constituées d'un alliage or-argent, ayant un diamètre compris entre 50 et 100 nm ainsi qu'une petite quantité de cuivre. [77,78]. La couleur rouge par transmission vient de l'existence de plasmons de surface localisés qui absorbent la lumière dans un domaine de longueur d'onde complémentaire du rouge. La couleur verte perçue lors d'un éclairage extérieur résulte de la réflexion diffuse par la surface du verre.

1.2.2 Approximation quasi-statique

Nous allons nous intéresser à l'interaction entre une nanoparticule métallique située dans le vide et une onde plane polarisée linéairement (figure 1.14). La nanoparticule de rayon R et de volume V possède une constante diélectrique complexe ε fonction de la pulsation ω :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) \quad (1.7)$$

Nous nous plaçons dans l'approximation quasi-statique, ce qui consiste à négliger les effets de retards dus à la vitesse finie de la propagation de l'onde.

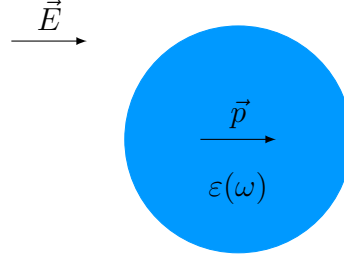


FIGURE 1.14 – Schéma de l'interaction entre une nanoparticule métallique de rayon R et d'un champ électrique \vec{E}

Pour une nanoparticule dont le rayon R est très inférieur à la longueur d'onde incidente λ ($R \ll \lambda$) cela revient à considérer que le champ électromagnétique, à un instant t , est uniforme à l'intérieur de la particule. Il est possible de considérer que l'approximation quasi-statique est valide lorsque $R < \delta$, où R est le rayon de la particule et δ la profondeur de pénétration de l'onde à l'intérieur du métal (profondeur de peau). Par un calcul des coefficients de transmission et réflexion en énergie entre un milieu diélectrique et un milieu métallique, il est possible de montrer que δ s'exprime par [79] :

$$\delta = \frac{c}{\omega} \sqrt{\frac{2}{\varepsilon''}} \quad (1.8)$$

δ est la longueur caractéristique de décroissance de l'amplitude des ondes électromagnétiques à l'intérieur du métal. δ dépend de la pulsation ω de l'onde : lorsque ω augmente la profondeur de peau diminue. Nous pouvons noter qu'un métal parfait, c'est-à-dire un métal pour lequel aucune onde ne peut pénétrer à l'intérieur, a une permittivité $\varepsilon'' \rightarrow \infty$. Afin de donner un ordre de grandeur de δ , fixons une longueur d'onde incidente de 500 nm ($\omega = 3,77 \cdot 10^{15}$ rad.s⁻¹). A cette longueur d'onde la partie imaginaire de la permittivité relative ε'' de l'or vaut 3,2 et celle de l'argent 0,78. Dans ce cas on trouve $\delta = 63$ nm pour l'or et $\delta = 127$ nm pour l'argent. Pour $R < \delta$ il est alors possible de considérer que l'onde peut pénétrer jusqu'au centre de la particule [80]. Le nuage électronique oscille alors de manière parfaitement périodique. Lorsque $R > \delta$ il n'est plus possible de supposer le champ constant.

La nanoparticule est susceptible d'absorber ou de diffuser un champ incident dont les puissances absorbée et diffusée sont notées respectivement W_{abs} et W_{diff} . L'atténuation d'un faisceau incident d'intensité I_0 , s'exprimant en $W.m^{-2}$, est caractérisée par la section efficace d'extinction σ_{ext} (en m^2) qui s'écrit :

$$\sigma_{ext} = \frac{W_{abs} + W_{diff}}{I_0} \quad (1.9)$$

La section efficace d'extinction σ_{ext} est la somme des sections efficaces d'absorption σ_{abs} et de diffusion σ_{diff} :

$$\sigma_{abs} = \frac{W_{abs}}{I_0} \quad \text{et} \quad \sigma_{diff} = \frac{W_{diff}}{I_0} \quad (1.10)$$

Le champ local (microscopique) \vec{E}_l à l'intérieur de la nanoparticule diffère du champ macroscopique \vec{E}_{mac} . Du fait de sa taille très inférieure à la plus petite longueur d'onde constitutive du champ électromagnétique, la sphère pourra être supposée uniformément polarisée. D'après la formule de Lorentz, \vec{E}_l s'exprime en fonction de \vec{E}_{mac} et de la polarisation \vec{P} [79] :

$$\vec{E}_l = \vec{E}_{mac} + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0} \quad (1.11)$$

D'un point de vue macroscopique le lien entre la polarisation \vec{P} et le champ \vec{E}_{mac} est donné par :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi(\omega) \vec{E}_{mac} \quad (1.12)$$

où χ est la susceptibilité de la nanoparticule qui est lié à la fonction diélectrique ε par la relation $\chi(\omega) = \varepsilon(\omega) - 1$. Le lien entre le moment dipolaire de la particule \vec{p} et le champ local \vec{E}_l s'exprime, au premier ordre pour des champs faibles, en fonction de la polarisabilité α (en m^3) :

$$\vec{p} = \varepsilon_0 \alpha(\omega) \vec{E}_l \quad (1.13)$$

D'après l'équation (1.11) :

$$\vec{p} = \varepsilon_0 \alpha(\omega) \left(\vec{E}_{mac} + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0} \right) \quad (1.14)$$

Comme nous considérons le champ uniforme à l'intérieur de la nanoparticule, le moment dipolaire \vec{p} est égale à la polarisation macroscopique \vec{P} multiplié par le volume V de la particule : $\vec{p} = V\vec{P}$. On arrive donc à la relation :

$$V\varepsilon_0\chi(\omega)\vec{E}_{mac} = \varepsilon_0\alpha(\omega) \left(1 + \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{3} \right) \vec{E}_{mac} \quad (1.15)$$

L'expression de la polarisabilité α , s'écrit alors :

$$\alpha(\omega) = 3V \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \quad (1.16)$$

Cette formule est connue comme la relation de Clausius-Mossotti. Dans le cas où la sphère est située dans une matrice diélectrique ayant une constante diélectrique (indépendante de la longueur d'onde) ε_m la relation (1.16) s'écrit [81] :

$$\alpha(\omega) = 3V \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{\varepsilon(\omega) + 2\varepsilon_m} \quad (1.17)$$

La polarisabilité permet de calculer les sections efficaces d'extinction σ_{ext} et de diffusion σ_{diff} qui sont définies par [82] :

$$\sigma_{ext} = k \text{Im} [\alpha] \quad (1.18)$$

$$\sigma_{diff} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha|^2 \quad (1.19)$$

où k est le vecteur d'onde du champ incident, s'exprimant en m^{-1} . En remplaçant α par l'expression trouvée à l'équation (1.17) nous arrivons à :

$$\sigma_{ext} = \frac{\omega}{c} 3V \frac{3\varepsilon''(\omega)\varepsilon_m^{3/2}}{(\varepsilon'(\omega) + 2\varepsilon_m)^2 + \varepsilon''(\omega)^2} \quad (1.20)$$

$$\sigma_{diff} = \left(\frac{\omega}{c} \right)^4 (3V)^2 \frac{\varepsilon_m^2 (\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_m)^2 + \varepsilon''(\omega)^2}{6\pi (\varepsilon'(\omega) + 2\varepsilon_m)^2 + \varepsilon''(\omega)^2} \quad (1.21)$$

La section efficace d'absorption σ_{abs} peut ensuite se déduire : $\sigma_{abs} = \sigma_{ext} - \sigma_{diff}$.

Dans le cas de l'approximation quasi-statique nous remarquons que la fréquence de résonance de la nanoparticule sphérique est indépendante de son volume (donc de sa taille). Pour un rayon R très inférieur à la longueur d'onde λ , la section efficace d'extinction est supérieure à la section efficace de diffusion. En effet :

$$\frac{\sigma_{ext}}{\sigma_{diff}} \propto \left(\frac{\lambda}{R}\right)^3 \quad (1.22)$$

Dans ce cas, $\sigma_{ext} \approx \sigma_{abs}$ et le phénomène d'absorption domine. La section efficace d'extinction σ_{ext} passe par un maximum lorsque le dénominateur $(\varepsilon'(\omega) + 2\varepsilon_m)^2 + \varepsilon''(\omega)^2$ est minimum. Pour des valeurs faibles ou lentement variable de la partie imaginaire ε'' de la fonction diélectrique du métal, σ_{ext} est maximum lorsque $\varepsilon'(\omega_r) = -2\varepsilon_m$ [83]. La pulsation de résonance ω_r dépend alors fortement de l'indice de la matrice. Pour un rayon R du même ordre de grandeur que la longueur d'onde, le phénomène diffusion n'est plus négligeable et des effets de retards sont à prendre en compte.

1.2.3 Effets de retard

Dans le cas de l'approximation quasi-statique nous avons négligé les effets de retards dus à la vitesse finie de l'onde incidente. Pour des particules avec un rayon R du même ordre de grandeur que la longueur d'onde incidente λ , cette approximation n'est plus valide et la distribution spatiale du champ à l'intérieur de la particule n'est plus uniforme. Il est alors nécessaire de prendre en compte des contributions multipolaires (figure 1.15). En effet les variations spatiales du champ électrique induisent une distribution de charges complexes avec l'apparition de modes d'ordres supérieurs (quadrupolaire, octupolaire...).

G. Mie a proposé une théorie qui décrit l'interaction d'une onde plane électromagnétique monochromatique avec une nanoparticule sphérique homogène en se basant sur un développement multipolaire du champ. Cette théorie permet d'obtenir les sections efficaces d'extinction d'absorption et de

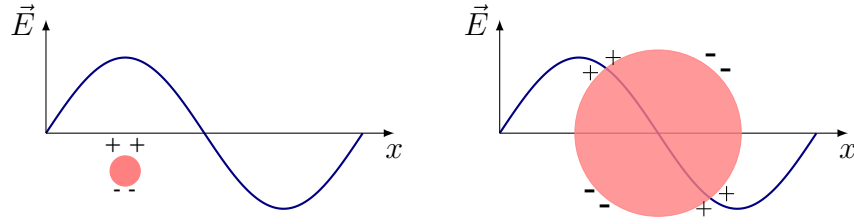


FIGURE 1.15 – Schéma d’une nanoparticule avec $R \ll \lambda$ où la sphère est polarisée selon l’axe du champ (à gauche) et avec $R \approx \lambda$ où il y a apparition d’un mode quadrupolaire du à la variation spatiale du champ électrique (à droite).

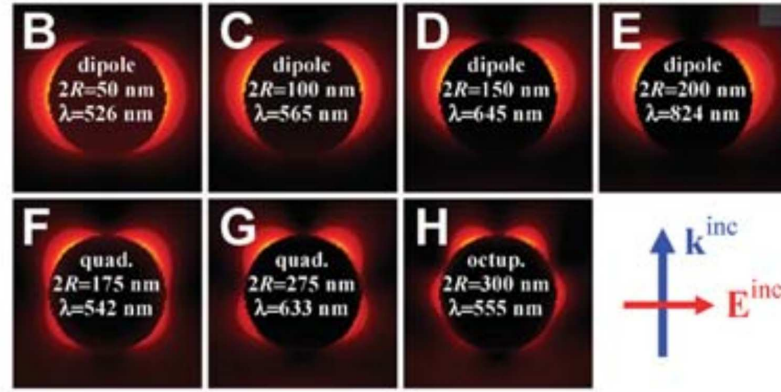


FIGURE 1.16 – Augmentation du champ local pour des modes dipolaire, quadrupolaire et octupolaire d’un nanosphère d’or de différents rayon R et différentes longueur d’onde λ . Extrait de [80].

diffusion quelque soit la taille de la particule. La description complète pourra être trouvée dans la littérature [84, 85].

La figure 1.16 (extraite de [80]) présente des cartes du rapport entre le module du champ total E et le module du champ incident E_0 pour différentes tailles de nanosphère d’or et différentes longueur d’ondes du champ incident. Nous pouvons voir différents modes de résonance : dipolaire, quadrupolaire et octupolaire. Le rapport E/E_0 permet de visualiser l’augmentation de champ (*field enhancement*). Le mode dipolaire correspond à une augmentation de champ suivant la direction de polarisation de l’onde incidente avec deux régions où le champ est intense. Le mode quadrupolaire correspond à 4 régions

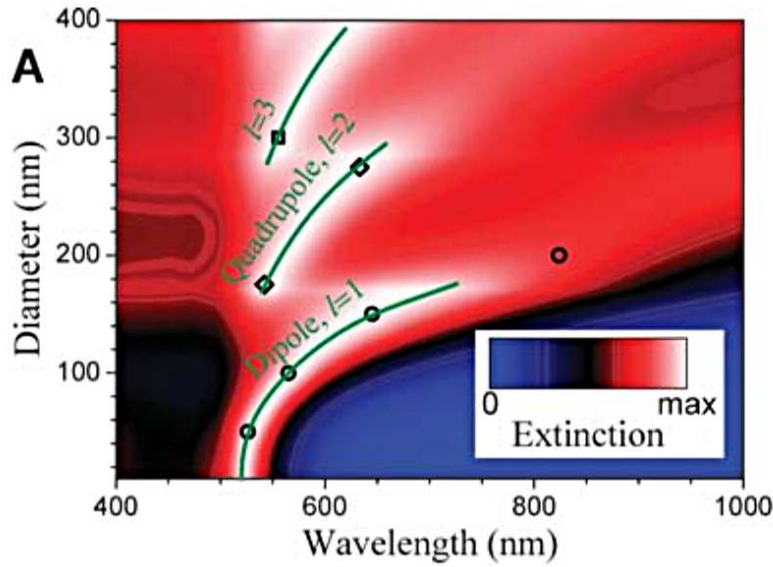


FIGURE 1.17 – Section efficace d’extinction d’une sphère d’or en fonction de son diamètre et de la longueur d’onde incidente. Extrait de [80].

et le mode $l = 3$ à 6 régions. Ces différents modes n’existent pas pour toutes les tailles de sphères. La figure 1.17 présente la section efficace d’extinction d’une sphère d’or en fonction de son diamètre et de la longueur d’onde incidente calculée par la théorie de Mie. Nous remarquons que pour avoir des modes d’ordre supérieurs au mode dipolaire, il est nécessaire d’augmenter le diamètre de la particule. Pour un diamètre inférieur à 150 nm, seul le mode dipolaire existe. Pour un même mode l’augmentation du diamètre induit un décalage de la résonance vers les grandes longueurs d’ondes.

Plus généralement il existe plusieurs géométries pour lesquelles les équations de Maxwell peuvent être résolues analytiquement : cylindre infini, ellipsoïde, sphère sur un plan *etc.* Cependant la géométrie des objets reste simple et chaque changement de forme de la nanoparticule nécessite une nouvelle résolution analytique. Pour ces raisons nous avons préféré une approche numérique qui permet d’étudier des particules de formes arbitraires. Nous avons privilégié la méthode FDTD (*Finite-difference time-domain method*) qui sera présentée en détail dans le chapitre 2. Le choix de cette méthode s’est fait au regard de ces nombreux avantages : n’importe quelle forme d’objet peut

être modélisée, un ensemble de longueurs d'ondes peut être sondé avec un seul calcul et les équations de Maxwell sont discrétisées à l'aide d'un schéma centré conduisant, dans ce travail, à une approximation à l'ordre deux. Cette méthode numérique sera développée en détail dans le chapitre 2.

1.2.4 Résonance Fano

La résonance de type Fano a été introduite pour la première fois par Ugo Fano en 1961 [86]. Il s'agit d'un modèle très général qui désigne les interférences entre deux phénomènes physiques, où l'un a un spectre discret en énergie et l'autre un spectre continu. La caractéristique des résonances de type Fano est d'avoir un profil asymétrique. Ce type de résonance peut être observé dans de nombreux domaines de la physique, comme en microscopie [87], en photonique [88], en physique quantique [89] mais aussi en plasmonique [90]. L'intérêt en plasmonique d'une résonance Fano est d'avoir une raie de résonance aiguë permettant une grande sélectivité spectrale. Ce type de résonance permet alors d'augmenter significativement la section efficace d'extinction sur une plage de fréquence réduite. La description rigoureuse de ce type de résonance nécessite de faire appel à une description quantique. Nous avons préféré montrer l'apparition de résonances Fano à l'aide de deux oscillateurs harmoniques couplés, dont l'un possède une résonance avec une largeur à mi-hauteur très inférieure à celle du second oscillateur.

Résonance d'un oscillateur harmonique

L'approximation harmonique consiste à développer un potentiel d'interaction à l'ordre 2 au voisinage d'un équilibre. Il est utilisé dans de nombreux domaines de la physique : en électricité pour décrire par exemple un circuit RLC, en mécanique avec par exemple un système composé d'une masse et d'un ressort ou encore en physique atomique avec le modèle de l'électron élastiquement lié autour d'un noyau que nous développerons dans le chapitre 2.

Prenons l'exemple d'une masse m accrochée à un ressort de raideur k dont le mouvement est entretenu par une force extérieure (par exemple un

moteur) F oscillant à la pulsation ω . En considérant un terme de frottement Γ , la position x de la masse obéit à l'équation suivante :

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \Gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x = \frac{F}{m} e^{i\omega t} \quad (1.23)$$

où $\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}}$ est la pulsation propre du système masse-ressort. Nous nous plaçons dans le cas où $\Gamma \ll \omega_0$. La solution $x(t)$ en régime permanent ($t \gg \Gamma^{-1}$) à cette équation peut s'écrire en fonction d'une amplitude complexe c [91] :

$$x(t) = c(\omega) e^{i\omega t} \quad (1.24)$$

avec

$$c(\omega) = \frac{\frac{F}{m}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \quad (1.25)$$

Le module $|c|$ de c ($c(\omega) = |c(\omega)|e^{-i\phi(\omega)}$) est une fonction Lorentzienne centrée en ω_0 :

$$|c(\omega)| = \frac{\frac{F}{m}}{\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \Gamma^2\omega^2}} \quad (1.26)$$

Et la phase $\phi(\omega)$ correspondante s'écrit :

$$\phi(\omega) = \arctan\left(\frac{\omega\Gamma}{\omega_0^2 - \omega^2}\right) \quad (1.27)$$

L'amplitude d'oscillation est une fonction Lorentzienne qui est maximum lorsque le système est excité à sa fréquence propre ($\omega = \omega_0$) (figure 1.18).

Deux oscillateurs couplés

Nous discutons maintenant de deux oscillateurs couplés avec un ressort. Le premier oscillateur est entretenu par un terme $a_1 e^{i\omega t}$ et le couplage entre les deux oscillateurs est décrit par le paramètre v .

$$\ddot{x}_1 + \gamma_1 \dot{x}_1 + \omega_1^2 x_1 + vx_2 = a_1 e^{i\omega t} \quad (1.28)$$

$$\ddot{x}_2 + \gamma_2 \dot{x}_2 + \omega_2^2 x_2 + vx_1 = 0 \quad (1.29)$$

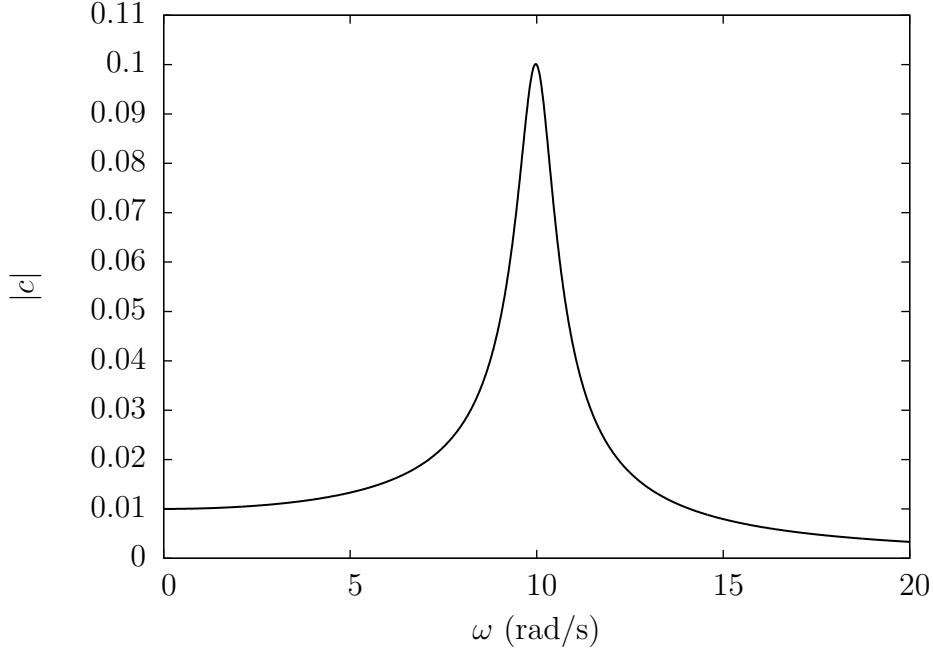


FIGURE 1.18 – Représentation du module $|c|$ avec les paramètres $F/m = 1$, $\omega_0 = 10$ et $\Gamma = 1$

Les déplacements x_1 et x_2 des deux oscillateurs peuvent s'écrire [91] :

$$x_1 = c_1 e^{i\omega t} \quad (1.30)$$

$$x_2 = c_2 e^{i\omega t} \quad (1.31)$$

avec les amplitudes complexes c_1 et c_2 :

$$c_1 = \frac{(\omega_2^2 - \omega^2 + i\gamma_2\omega)}{(\omega_1^2 - \omega^2 + i\gamma_1\omega)(\omega_2^2 - \omega^2 + i\gamma_2\omega) - v^2} a_1 \quad (1.32)$$

$$c_2 = -\frac{v}{(\omega_1^2 - \omega^2 + i\gamma_1\omega)(\omega_2^2 - \omega^2 + i\gamma_2\omega) - v^2} a_1 \quad (1.33)$$

$$(1.34)$$

Les modules $|c_1|$ et $|c_2|$ et les phases ϕ_1 et ϕ_2 correspondantes peuvent se déduire par les relations suivantes :

$$c_1(\omega) = |c_1(\omega)| e^{-i\phi_1(\omega)} \quad (1.35)$$

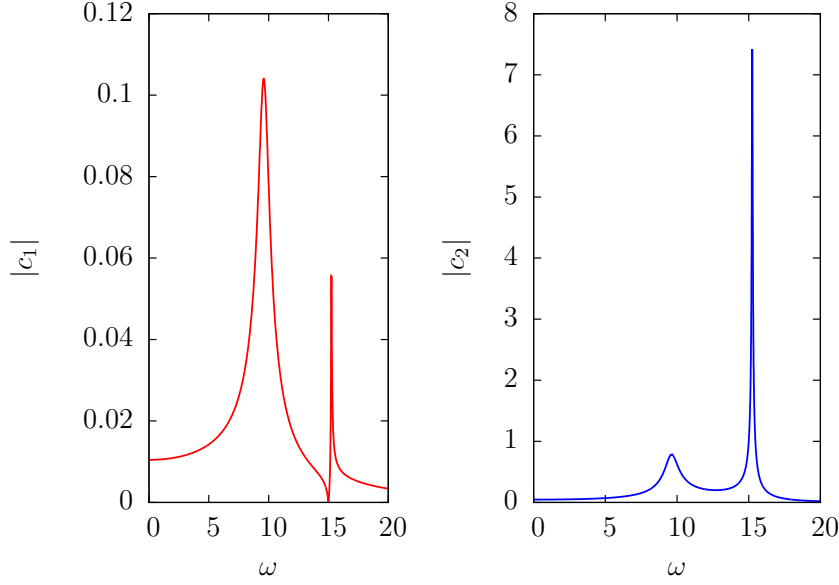


FIGURE 1.19 – Amplitudes $|c_1|$ et $|c_2|$ des deux oscillateurs en fonction de la pulsation ω .

$$c_2(\omega) = |c_2(\omega)|e^{-i\phi_2(\omega)} \quad (1.36)$$

Nous prenons les mêmes paramètres pour le premier oscillateur que pour l'oscillateur précédent, à savoir $\omega_1 = 10$ et $\gamma_1 = 1$. Pour le second oscillateur nous choisissons $\omega_2 = 15$ et une largeur à mi-hauteur très faible : $\gamma_2 = 0,01$. Le terme de couplage v est égal à 100 et $a_1 = 1$. Les amplitudes $|c_1|$ et $|c_2|$ en fonction de ω sont représentées sur la figure 1.19. La raie lorentzienne centrée à $\omega = 10$ et présentée au paragraphe précédent se retrouve sur le graphique $|c_1(\omega)|$ avec une amplitude comparable. Un second pic, asymétrique, proche de $\omega = 15$ et de largeur très fine est également visible sur ce graphique. L'asymétrie provient d'un passage par 0 de $c_1(\omega)$ pour $\omega = 15$. En effet d'après l'équation (1.32), lorsque $\omega = \omega_2$ et pour $\gamma_2 \simeq 0$, $|c_1| \simeq 0$. L'amplitude du pic proche de $\omega = 15$ est dépendant de la largeur à mi-hauteur γ_2 : il vaut 7,3 pour $\gamma_2 = 0,01$, 3,1 pour $\gamma_2 = 0,1$ et seulement 0,5 pour $\gamma_2 = 1$.

Application en plasmonique

Une résonance de type Fano apparaît lors d'un couplage entre un continuum d'états et un état discret. Par analogie avec les 2 oscillateurs couplés présentés précédemment, c'est un couplage entre un oscillateur avec une largeur à mi-hauteur élevée et un oscillateur avec une largeur à mi-hauteur faible. Ce type de résonance a été observé par Beutler sur un spectre d'absorption d'un gaz noble présentant des pics asymétriques [90] et U. Fano en a proposé une description théorique [86]. Par la suite de nombreux résultats expérimentaux ont été expliqués par la théorie développée par Fano [92–95].

Plusieurs structures, composées de nanoparticules ou nanocavités, permettant l'observation de ces résonances en plasmonique ont été imaginées [96–98]. Nous étudions dans le chapitre 4 l'observation d'une résonance Fano à partir d'un réseau carré de nanoparticules d'or. Un tel réseau présente des résonances discrètes pouvant se coupler avec la réponse spectrale continue des nanoparticules. La nanoparticule doit présenter une résonance dont la largeur à mi-hauteur est suffisamment élevée par rapport à la largeur à mi-hauteur de la résonance du réseau afin d'avoir le rôle de continuum d'états. Pour une nanoparticule de taille et de forme donnée, le pas de réseau devient alors un paramètre essentiel qu'il est nécessaire d'ajuster pour observer une résonance de type Fano [99, 100]. Notre travail de modélisation servira à déterminer le pas de réseau optimal pour différentes particules afin de permettre la fabrication d'échantillons possédant les bonnes caractéristiques pour une observation expérimentale.

Chapitre 2

Modélisation numérique

Sommaire

2.1	Les équations de Maxwell	42
2.2	Algorithme de Yee	44
2.2.1	Schéma de Yee	45
2.2.2	Stabilité et dispersion numérique	48
2.3	Conditions aux limites absorbantes	50
2.3.1	Définition de la couche parfaitement adaptée	52
2.4	Les sources de champ électromagnétique	56
2.4.1	Source dure	56
2.4.2	Champ total/Champ diffusé	61
2.5	Amplitude des champs électromagnétiques	69
2.6	Milieux dispersifs et milieux à gain	72
2.6.1	Les métaux	73
2.6.2	Description électronique d'un milieu à gain	82
2.7	Bilan	88

L'objectif de ce chapitre est de présenter la méthode des différences finies dans le domaine temporel (*finite-difference time-domain method, FDTD*) couplée à des équations différentielles auxiliaires (*Auxiliary differential equation*) qui sera utilisée dans les chapitre 3 et 4. Pour cela nous commencerons par un rappel des équations de Maxwell dans un milieu linéaire, homogène et isotrope (l.h.i) dans le paragraphe 2.1. Nous présenterons ensuite l'algorithme de Yee qui propose un schéma de discrétisation des équations de Maxwell dans le temps et l'espaces (2.2). Les spécificités de la méthode FDTD seront ensuite présentées. Les conditions aux limites de la zone de calcul seront introduites dans le paragraphe 2.3. Les différentes techniques qui permettent de créer une source de champ électromagnétique seront expliquées (2.4). La méthode FDTD étant une méthode temporelle, nous expliquerons, paragraphe 2.5, comment avoir accès à l'amplitude des champs en fonction de la fréquence. Enfin nous terminerons par exposer la modélisation de milieux dispersifs avec pertes (métaux) et luminescent à gain optique (2.6).

2.1 Les équations de Maxwell

Dans un milieu matériel, les différentes grandeurs dépendantes du temps t et des coordonnées de l'espace \vec{r} décrivant le champ électromagnétique sont :

- Le champ électrique \vec{E} (V.m⁻¹).
- Le champ magnétique \vec{H} (A.m⁻¹).
- L'induction électrique \vec{D} (C.m⁻²).
- L'induction magnétique \vec{B} (T).
- La densité de charges libre ρ_l (C.m⁻³).
- La densité de courant de charges libres \vec{j}_l (A.m⁻²).

Les évolution temporelle et spatiale de ces grandeurs sont gouvernées par les équations de Maxwell, qui s'écrivent, dans le cas général :

$$\operatorname{div} \vec{D} = \rho_l \qquad \text{Maxwell-Gauss} \qquad (2.1a)$$

$$\operatorname{div} \vec{B} = 0 \qquad \text{Maxwell-Thomson} \qquad (2.1b)$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad \text{Maxwell-Faraday} \quad (2.1c)$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{H} = j_l + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad \text{Maxwell-Ampère} \quad (2.1d)$$

Dans un milieu matériel la relations entre \vec{D} et \vec{E} s'exprime à l'aide du vecteur polarisation \vec{P} et de la permittivité du vide ε_0 :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2.2)$$

De même la relation entre \vec{H} et \vec{B} s'exprime à l'aide de l'aimantation \vec{M} (A.m⁻¹) et de la perméabilité du vide μ_0 :

$$\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0} - \vec{M} \quad (2.3)$$

Par la suite nous réduisons notre étude aux milieux linéaires, homogènes et isotropes (l.h.i.). Concernant les propriétés diélectriques, un milieu est linéaire si \vec{P} et \vec{E} sont liés par une susceptibilité électrique $[\chi_e]$ qui est un tenseur d'ordre 2 :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 [\chi_e] \vec{E} \quad (2.4)$$

Si le milieu est isotrope ses propriétés sont indépendantes de la direction, χ_e est alors un scalaire. Enfin si le milieu est homogène, χ_e est indépendant de la position. Dans un milieu l.h.i nous pouvons donc réécrire la relation entre \vec{D} et \vec{E} :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2.5)$$

$$= \varepsilon_0 (1 + \chi_e) \vec{E} \quad (2.6)$$

En définissant la permittivité relative $\varepsilon_r = 1 + \chi_e$ il vient :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} \quad (2.7)$$

De même dans un milieu l.h.i la relation entre \vec{B} et \vec{H} s'écrit à l'aide d'une perméabilité relative μ_r :

$$\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0 \mu_r} \quad (2.8)$$

En l'absence de charges libres ($\rho_l = 0$ et $\vec{j}_l = \vec{0}$) il est donc possible d'écrire les équations de Maxwell-Faraday et Maxwell-Ampère sous la forme :

$$\vec{\text{rot}} \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (2.9a)$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{H} = +\varepsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.9b)$$

Ces deux équations seront discrétisées par la méthode FDTD au regard des avantages suivants : les équations de Maxwell (2.9a) et (2.9b) décrivent de façon générale l'évolution du champ électromagnétique sans aucune approximation ce qui permet de traiter des problèmes aussi variés que les guides d'ondes, la plasmonique, le rayonnement des antennes ou encore les cristaux photoniques. Les champs électrique \vec{E} et magnétique \vec{H} sont calculés en fonction du temps permettant d'avoir accès à la réponse dynamique d'un système. D'autres méthodes sont moins généralistes telles la méthode BPM (*beam propagation method*) basée sur une approximation paraxiale ou encore la méthode DDA qui décrit l'objet à étudier par un ensemble fini de dipôles.

Nous détaillerons dans le paragraphe 2.2 l'algorithme de Yee qui est à la base de la méthode FDTD.

2.2 Algorithme de Yee : Discrétisation dans le temps et l'espace

Kane S. Yee propose en 1966 un algorithme de discrétisation dans le temps et l'espace des équations de Maxwell [101]. Tout d'abord le schéma numérique de l'algorithme de Yee ainsi que la manière de placer les champs \vec{E} et \vec{H} dans l'espace selon des grilles décalées sera présenté (2.2.1), puis les

critères de stabilités seront étudiés (2.2.2).

2.2.1 Schéma de Yee

L'algorithme de Yee est basé sur les équations de Maxwell-Faraday (2.9a) et Maxwell-Ampère (2.9b), exprimées en coordonnées cartésiennes dans un milieu de permittivité ε et perméabilité μ statiques, c'est-à-dire indépendantes de la longueur d'onde. Chaque composante du champ électrique \vec{E} et magnétique \vec{H} est fonction des trois coordonnées de l'espace (x, y, z) et du temps (t) .

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z} \right) \quad (2.10a)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial t} = -\frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x} \right) \quad (2.10b)$$

$$\frac{\partial H_z}{\partial t} = -\frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} \right) \quad (2.10c)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial t} = +\frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} \right) \quad (2.10d)$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial t} = +\frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} \right) \quad (2.10e)$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = +\frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} \right) \quad (2.10f)$$

L'algorithme de Yee est basé sur la discrétisation dans le temps et l'espace des équations (2.10d) à (2.10f), ce qui implique de remplacer les dérivées partielles par des différences finies. Les coordonnées d'espace et de temps s'écrivent donc en fonction d'indices entiers i, j, k et n : $x_i = i\Delta x$, $y_j = j\Delta y$, $z_k = k\Delta z$ et $t_n = n\Delta t$, où Δx , Δy et Δz sont respectivement les pas spatiaux selon x , y et z et Δt le pas de temps. Une composante u , d'un champ quelconque \vec{E} ou \vec{H} , s'écrit donc :

$$u(x_i, y_j, z_k, t_n) = u(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t) = u|_{i,j,k}^n \quad (2.11)$$

Pour illustrer le passage des dérivées partielles aux différences finies intéressons nous à la dérivée d'une fonction $f = f(x, t)$ par rapport à la variable d'espace x . Un développement de Taylor de f aux points $x_i + \frac{\Delta x}{2}$ et $x_i - \frac{\Delta x}{2}$ donne :

$$f(x_i + \frac{\Delta x}{2}, t) = f(x_i, t) + \frac{\Delta x}{2} \frac{\partial f(x_i, t)}{\partial x} + \frac{\Delta x^2}{8} \frac{\partial^2 f(x_i, t)}{\partial x^2} + o(\Delta x^2) \quad (2.12)$$

$$f(x_i - \frac{\Delta x}{2}, t) = f(x_i, t) - \frac{\Delta x}{2} \frac{\partial f(x_i, t)}{\partial x} + \frac{\Delta x^2}{8} \frac{\partial^2 f(x_i, t)}{\partial x^2} + o(\Delta x^2) \quad (2.13)$$

Ainsi la différence entre les équations (2.12) et (2.13) conduit à :

$$\frac{\partial f(x_i, t)}{\partial x} = \frac{f(x_i + \frac{\Delta x}{2}) - f(x_i - \frac{\Delta x}{2})}{\Delta x} + o(\Delta x^2) \quad (2.14)$$

Ainsi la dérivée de f par rapport à x au point x_i est calculée avec une erreur d'ordre 2. En notations condensées l'équation (2.14) s'écrit :

$$\left. \frac{\partial f}{\partial x} \right|_i^n = \frac{f|_{i+\frac{1}{2}}^n - f|_{i-\frac{1}{2}}^n}{\Delta x} + o(\Delta x^2) \quad (2.15)$$

Le même raisonnement nous amène à exprimer la dérivée de la fonction f par rapport au temps par une différence finie :

$$\left. \frac{\partial f}{\partial t} \right|_i^n = \frac{f|_i^{n+\frac{1}{2}} - f|_i^{n-\frac{1}{2}}}{\Delta t} + o(\Delta t^2) \quad (2.16)$$

L'erreur d'ordre 2, dans le temps et l'espace, est assuré par des différences centrées par l'algorithme de Yee :

- Dans l'espace les composantes des champs \vec{E} et \vec{H} sont placées sur des grilles décalées. Le placement des champs selon une cellule élémentaire, appelée cellule de Yee, est présenté de manière schématique figure 2.1. Ce placement particulier permet que chaque composante de \vec{H} soit entourée par quatre composantes de \vec{E} et de la même manière chaque composante de \vec{E} soit entourée par quatre composantes de \vec{H} .
- Dans le temps il y a un calcul alterné des champs \vec{E} et \vec{H} dans tout l'espace. Concrètement les champs \vec{E} et \vec{H} sont décalés d'un demi pas

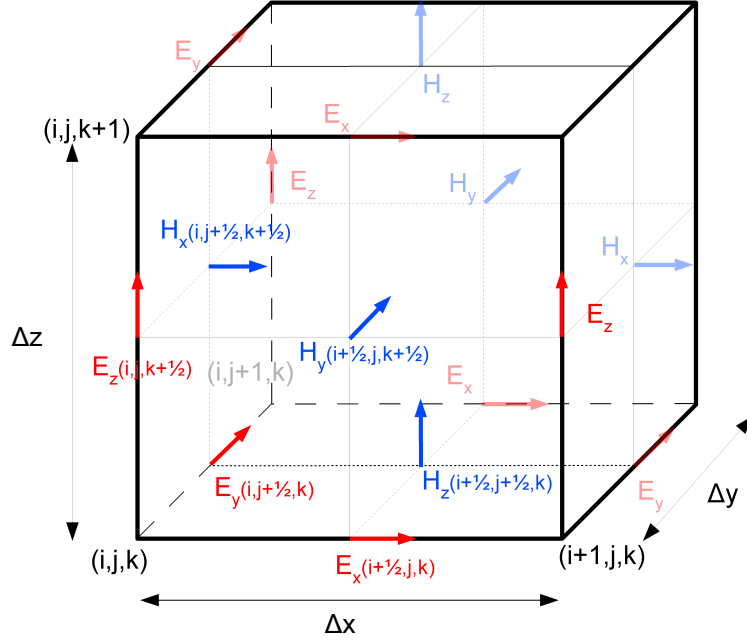


FIGURE 2.1 – Cellule de Yee montrant la disposition des composantes des champs électrique et magnétique. Les notations en transparence représente les composantes qui n'appartiennent pas à la cellule (i, j, k)

de temps. Par convention nous choisissons que les champs \vec{E} sont calculés à l'instant n et les champs \vec{H} à l'instant $n + \frac{1}{2}$. Les nouvelles valeurs du champ électromagnétique sont donc déterminées à partir des précédentes (schéma explicite).

Prenons l'exemple de l'équation (2.10a) qui nécessite le passage aux différences finies de trois dérivées : $\frac{\partial H_x}{\partial t}$, $\frac{\partial E_z}{\partial y}$ et $\frac{\partial E_y}{\partial z}$.

$$\frac{\partial H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n}{\partial t} = \frac{H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}}}{\Delta t} + o(\Delta t^2) \quad (2.17)$$

$$\frac{\partial E_z|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n}{\partial y} = \frac{E_z|_{i,j+1,k+\frac{1}{2}}^n - E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta y} + o(\Delta y^2) \quad (2.18)$$

$$\frac{\partial E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n}{\partial z} = \frac{E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k+1}^n - E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^n}{\Delta z} + o(\Delta z^2) \quad (2.19)$$

En utilisant les équations (2.17),(2.18) et (2.19), l'évolution temporelle

de la composante H_x , d'après l'équation 2.10a, s'écrit :

$$H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} = H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{\mu} \left(\frac{E_z|_{i,j+1,k+\frac{1}{2}}^n - E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta y} - \frac{E_y|_{i,j+1/2,k+1}^n - E_y|_{i,j+1/2,k}^n}{\Delta z} \right) \quad (2.20)$$

Le même raisonnement est applicable pour les autres composantes du champ électromagnétique et l'ensemble des équations est présenté dans l'annexe A. Nous pouvons noter que nous n'avons pas utilisé les équations Maxwell-Gauss (2.1a) et Maxwell-Thomson (2.1b). En effet par le placement des champs selon la cellule de Yee ces équations sont vérifiées implicitement [1].

Comme tout schéma numérique des conditions sur le pas de temps Δt mais aussi sur les pas d'espace $\Delta x, \Delta y, \Delta z$ doivent être respectées afin que la méthode soit stable. Ces critères de stabilité sont maintenant détaillés.

2.2.2 Stabilité et dispersion numérique

Un mauvais choix de pas d'espace ou de temps peut rendre l'algorithme instable, c'est-à-dire que les champs divergent et atteignent des valeurs non physiques, ou introduire une dispersion numérique, à savoir une vitesse de phase numérique très différente de la vitesse de phase réelle.

Stabilité

Dans un milieu physique la dispersion est le lien entre la vitesse de propagation d'une onde c et sa pulsation ω . La relation de dispersion s'écrit en fonction des composantes k_x, k_y et k_z du vecteur d'onde \vec{k} :

$$\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 = (k_x)^2 + (k_y)^2 + (k_z)^2 \quad (2.21)$$

La dispersion numérique relie la vitesse de l'onde se propageant numéri-

quement à sa fréquence. La relation de dispersion numérique s'écrit [1] :

$$\left[\frac{1}{c\Delta t} \sin\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) \right]^2 = \left[\frac{1}{\Delta x} \sin\left(\frac{k_x\Delta x}{2}\right) \right]^2 + \left[\frac{1}{\Delta y} \sin\left(\frac{k_y\Delta y}{2}\right) \right]^2 + \left[\frac{1}{\Delta z} \sin\left(\frac{k_z\Delta z}{2}\right) \right]^2 \quad (2.22)$$

Nous pouvons remarquer que l'équation (2.22) tend vers l'équation (2.21) lorsque Δt , Δx , Δy et Δz tendent vers 0. Nous cherchons la condition limite qui permet d'avoir une pulsation ω réelle. En posant $\omega = \frac{2}{\Delta t} \arcsin(\xi)$ nous devons donc avoir $0 < \xi < 1$. A l'aide de la relation (2.22), nous aboutissons à un encadrement de ξ :

$$0 < \xi < c\Delta t \sqrt{\frac{1}{(\Delta x)^2} + \frac{1}{(\Delta y)^2} + \frac{1}{(\Delta z)^2}} \quad (2.23)$$

Cela nous amène donc à une relation entre le pas de temps Δt et les pas d'espace Δx , Δy et Δz qui garantit la stabilité :

$$c\Delta t \sqrt{\frac{1}{(\Delta x)^2} + \frac{1}{(\Delta y)^2} + \frac{1}{(\Delta z)^2}} < 1 \quad (2.24)$$

En définissant le nombre de Courant S tel que $0 < S < 1$ nous pouvons poser :

$$\Delta t = \frac{S}{c\sqrt{\frac{1}{(\Delta x)^2} + \frac{1}{(\Delta y)^2} + \frac{1}{(\Delta z)^2}}} \quad (2.25)$$

Nous étudions maintenant la vitesse de phase numérique, ce qui permet de trouver une condition sur les pas d'espaces Δx , Δy et Δz .

Dispersion numérique

La discrétisation dans l'espace et dans le temps amène à une vitesse de phase différente selon la direction de propagation. Prenons l'exemple d'une onde qui se propage dans du vide à la vitesse c . Afin de simplifier le raisonnement, nous considérons une cellule de Yee carrée, c'est-à-dire

$\Delta x = \Delta y = \Delta z = \Delta$. Dans ce cas d'après l'équation (2.25) nous avons :

$$\Delta t = S \frac{\Delta}{\sqrt{3}c} \quad (2.26)$$

Définissons le nombre N_λ qui est le rapport entre la longueur d'onde λ et le pas d'espace Δ : $N_\lambda = \frac{\lambda}{\Delta}$. A partir de la relation (2.26) et N_λ nous pouvons remarquer que $\frac{\omega \Delta t}{2} = \frac{\pi S}{\sqrt{3}N_\lambda}$. Nous comparons la vitesse de phase v_p dans deux cas extrêmes :

- L'onde se propage selon un axe principal (par exemple l'axe x , donc $k = k_x$ et $k_y = 0, k_z = 0$). La vitesse de phase v_p , d'après l'équation (2.22), est :

$$v_p = \frac{\omega}{k} = \frac{\pi}{N_\lambda \arcsin\left(\frac{\sqrt{3}}{S} \sin\left(\frac{\pi S}{\sqrt{3}N_\lambda}\right)\right)} c \quad (2.27)$$

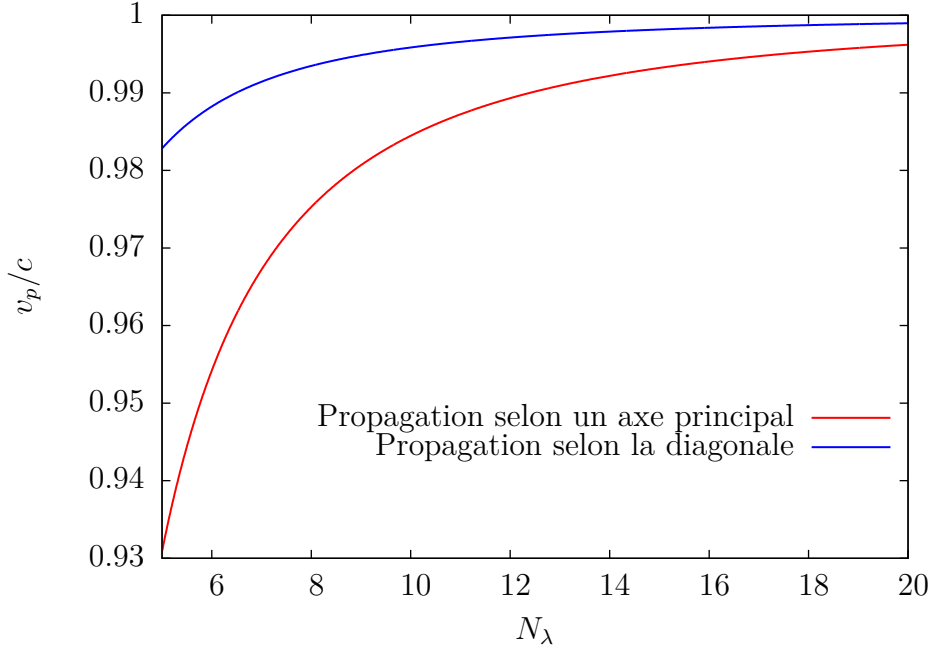
- L'onde se propage selon une diagonale, c'est à dire $k_x = k_y = k_z = \frac{k}{\sqrt{3}}$. La vitesse de phase v_p est :

$$v_p = \frac{\omega}{k} = \frac{\pi}{N_\lambda \sqrt{3} \arcsin\left(\frac{1}{S} \sin\left(\frac{\pi S}{\sqrt{3}N_\lambda}\right)\right)} c \quad (2.28)$$

La vitesse de phase v_p divisée par la vitesse de la lumière c en fonction de N_λ pour $S = 0.5$ est présentée figure 2.2. Pour $N_\lambda = 5$ la différence de vitesse entre l'onde qui se propage selon un axe et celle qui se propage selon la diagonale est de 5.58%. Pour $N_\lambda = 20$ cette différence est de 0.28%. Généralement on impose $N_\lambda > 10$ ce qui permet d'avoir une différence de vitesse selon la direction de propagation inférieure à 1%.

2.3 Conditions aux limites absorbantes

L'espace mémoire fini des calculateurs impose de limiter le nombre de cellules élémentaires. Aux limites de la zone de calcul il est donc nécessaire de fixer des conditions particulières afin de pouvoir calculer le champ électromagnétique. Pour cela plusieurs méthodes peuvent être envisagées :

FIGURE 2.2 – v_p/c en fonction de N_λ pour $S=0.5$

- Imposer les champs électrique et magnétique nuls aux limites de la zone de calcul. Cela revient à simuler un métal parfait (*perfect electric conductor, PEC*) où le champ électromagnétique ne peut pas pénétrer provoquant ainsi une réflexion totale. Cette méthode n'est pas utilisée car les champs électromagnétiques réfléchis interfèrent avec les champs à l'intérieur de la zone de calcul.
- La méthode introduite par Engquist et Majda puis développée par G. Mur [102, 103] est basée sur la modification de l'équation générale de propagation des ondes planes. Elle consiste à utiliser cette équation aux limites de la zone de calcul pour simuler l'absence de bords. Cette méthode permet d'avoir une réflexion nulle en incidence normale mais des réflexions parasites apparaissent en incidence oblique.
- La méthode introduite par J.-P. Bérenger [104] est basée sur l'ajout aux limites de la zone de calcul d'une couche parfaitement adaptée (*PML : perfectly matched layer*) possédant des conductivités électrique σ^e et magnétique σ^m fictives de telle sorte que le champ élec-

tromagnétique soit absorbé tout en limitant les réflexions.

Nous avons choisi la méthode de la couche parfaitement adaptée (PML) car elle présente les meilleurs résultats par rapport à la méthode de Mur [105]. Les principes de la PML sont maintenant exposés dans le paragraphe 2.3.1.

2.3.1 Définition de la couche parfaitement adaptée

L'objectif de la PML est d'absorber le plus efficacement possible le champ électromagnétique aux limites de la zone FDTD afin de simuler artificiellement un espace infini. La zone PML est présente sur chacun des bords de la zone de calcul, entourant complètement la zone FDTD comme le montre en 2 dimensions la figure 2.3. De plus la zone PML est entourée d'une couche où l'on impose $\vec{E} = 0$ et $\vec{H} = 0$ (PEC). Cela permet que le calcul des champs \vec{E} et \vec{H} soit possible dans toute la zone PML. L'amplitude des champs électromagnétique après un aller-retour dans la zone PML doit être négligeable. L'absorption du champ électromagnétique dans la zone PML peut être modélisée par des conductivités électrique σ^e (S.m⁻¹) et magnétique σ^m (Ω.m⁻¹) non physiques. Les équations de Maxwell s'écrivent alors :

$$\begin{cases} \vec{\text{rot}} \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} + \sigma^m \vec{H} \\ \vec{\text{rot}} \vec{H} = +\varepsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \sigma^e \vec{E} \end{cases} \quad (2.29)$$

La discrétisation des équations 2.29 s'établit selon la méthode présentée dans le paragraphe 2.2 et pourra être trouvée dans la littérature [1]. Ce que nous appellerons par la suite zone de calcul est l'ensemble de la zone FDTD, la zone PML et la couche PEC.

Pour minimiser les réflexions à l'interface de la zone FDTD et de la zone PML nous devons adapter l'impédance entre ces deux zones. L'impédance est définie comme le rapport entre l'amplitude du champ électrique E_0 et l'amplitude du champ magnétique H_0 :

$$Z = \sqrt{\frac{E_0}{H_0}} \quad (2.30)$$

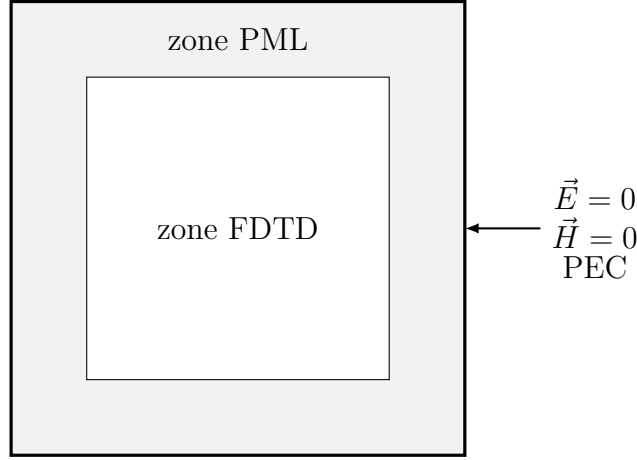


FIGURE 2.3 – Schéma en deux dimensions de la zone de calcul, qui comprend la zone FDTD entourée de la zone PML elle-même entourée d'une couche où $\vec{E} = 0$ et $\vec{H} = 0$ (PEC).

Dans la zone FDTD, l'impédance est celle d'un milieu linéaire, homogène et isotrope possédant une perméabilité magnétique μ et une permittivité électrique ε :

$$Z_{\text{FDTD}} = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}} \quad (2.31)$$

Dans la zone PML l'impédance dépend de la pulsation ω du champ :

$$Z_{\text{PML}} = \sqrt{\frac{\sigma^m + i\mu_{\text{PML}}\omega}{\sigma^e + i\varepsilon_{\text{PML}}\omega}} \quad (2.32)$$

L'adaptation d'impédance entre la zone FDTD et la zone PML ($Z_{\text{FDTD}} = Z_{\text{PML}}$) impose deux conditions :

- Il faut adapter la permittivité électrique et la perméabilité magnétique entre la zone FDTD et la zone PML :

$$\frac{\mu}{\varepsilon} = \frac{\mu_{\text{PML}}}{\varepsilon_{\text{PML}}} \quad (2.33)$$

- Il faut respecter la relation entre la conductivité électrique et la conductivité magnétique :

$$\frac{\sigma^m}{\sigma^e} = \frac{\mu}{\varepsilon} \quad (2.34)$$

L'adaptation d'impédance permet d'avoir une réflexion nulle en incidence normale mais totale en incidence rasante [104] . Afin d'avoir un degré de liberté supplémentaire, J-P Béranger a proposé de décomposer chacune des 6 composantes du champ électromagnétique en 2 sous composantes.

Par exemple dans la zone PML la composante H_x du paragraphe 2.2.1 devient :

$$H_x = H_{xy} + H_{xz} \quad (2.35)$$

Dans ce cas H_{xy} et H_{xz} sont régies par les deux équations (d'après l'équation (2.29)) suivantes :

$$\left(\mu \frac{\partial}{\partial t} + \sigma_y^m \right) H_{xy} = - \frac{\partial}{\partial y} (E_{zx} + E_{zy}) \quad (2.36)$$

$$\left(\mu \frac{\partial}{\partial t} + \sigma_z^m \right) H_{xz} = - \frac{\partial}{\partial z} (E_{yz} + E_{yx}) \quad (2.37)$$

où σ_y^m est non nul dans le plan perpendiculaire à l'axe y et σ_z^m dans le plan perpendiculaire à l'axe z . En traitant les deux autres composantes H_y et H_z il apparaît une conductivité σ_x non nulle dans le plan perpendiculaire à l'axe x . De la même façon une décomposition est aussi effectuée pour le champ électrique ce qui amène à l'introduction de conductivités électriques σ_x^e, σ_y^e et σ_z^e . La figure 2.4 est illustration de la décomposition d'une onde dans la zone PML pour une frontière FDTD/PML suivant l'axe z :

- L'onde en incidence normale se propageant suivant l'axe z est absorbée dans la PML qui présente une conductivité électrique σ_z^e et magnétique σ_z^m non nulle.
- L'onde en incidence rasante se propageant suivant l'axe y n'est pas absorbée car $\sigma_y^e = 0$ et $\sigma_y^m = 0$.

La figure 2.5 présente dans un plan (yz) la localisation de $\sigma_y^m, \sigma_z^m, \sigma_y^e$ et σ_z^e . Dans les coins les 4 conductivités ont des valeurs non nulles ce qui permet l'absorption des ondes en incidence rasante.

L'introduction d'une variation abrupte des conductivités électrique σ^e et magnétique σ^m crée un coefficient de réflexion important à l'interface des

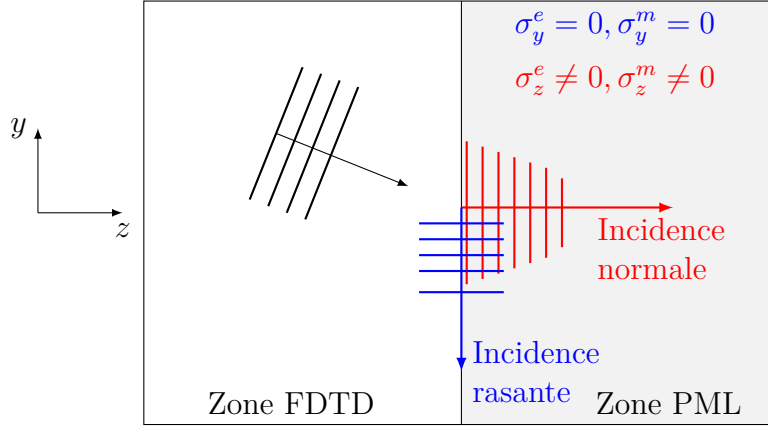


FIGURE 2.4 – Illustration de la décomposition et de l'absorption des champs dans la zone PML

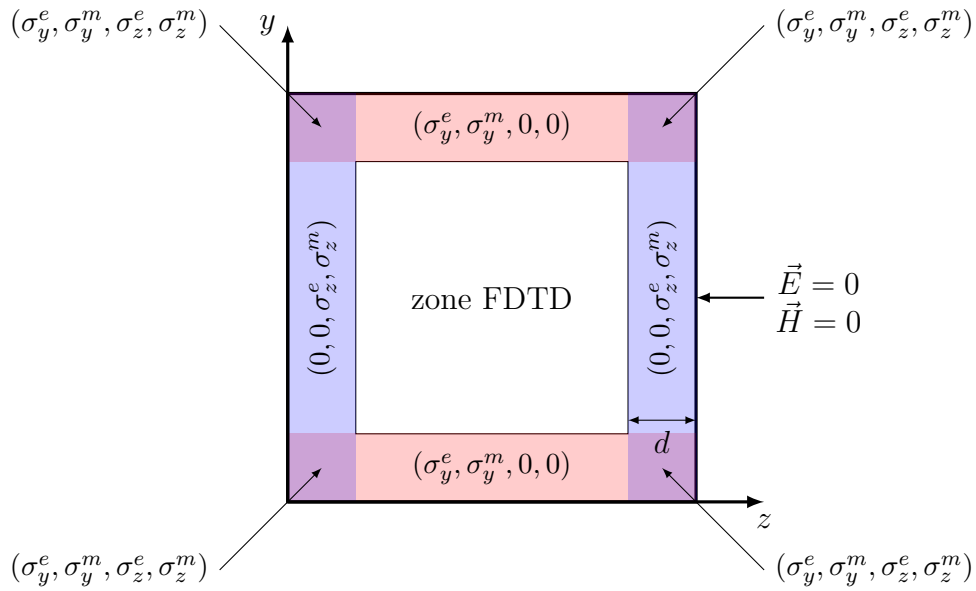


FIGURE 2.5 – Schéma de la localisation des conductivité électrique σ^e et magnétique σ^m dans un plan yz

zones FDTD/PML. Pour éviter cela il est préférable d'augmenter progressivement σ^e et σ^m en fonction de la profondeur dans la zone PML. J.-P. Bérenger propose une loi de type polynomiale [104]. Avec une couche PML d'épaisseur d , la conductivité σ (électrique ou magnétique) en fonction de la profondeur z est donnée par :

$$\sigma(z) = \sigma_{max} \left(\frac{z}{d} \right)^n \quad (2.38)$$

où σ_{max} est la conductivité maximale et n l'ordre du polynôme qui est généralement pris entre 2 et 4 [104]. Nous utilisons, pour les calculs présentés chapitre 3 et 4 une épaisseur de PML de 20 cellules avec une conductivité électrique maximale $\sigma_{max}^e = 10^6$ et $n = 3$. Ces paramètres ont été choisis suite à un compromis entre une épaisseur PML la plus faible possible et des réflexions négligeables. Pour cela nous avons comparé le champ électromagnétique dans une zone de calcul "test" possédant une couche PML et une zone de calcul de référence supposée assez grande pour être considéré infinie sur la période de calcul.

Le section 2.4 suivante sera consacrée aux différentes techniques afin de créer une onde électromagnétique dans la zone FDTD.

2.4 Les sources de champ électromagnétique

Nous montrons dans ce paragraphe comment créer une source ponctuelle par la technique de la source dure (2.4.1) ainsi qu'une onde plane infinie par la méthode du champ total/champ diffusé (2.4.2). D'autres méthodes, qui ne seront pas développées ici, existent telles que la source molle ou les sources de courant \vec{J} et \vec{M} [1].

2.4.1 Source dure

La technique de la source dure consiste à imposer dans une zone de l'espace soit un champ électrique $\vec{E}(t)$ ou magnétique $\vec{H}(t)$ et de calculer l'autre champ par la méthode FDTD. Cette zone peut être une unique cellule, ce

qui permet de modéliser un dipôle, un segment ou encore un plan. Nous pouvons choisir d'imposer \vec{E} ou \vec{H} indifféremment. De plus il est possible de donner une forme temporelle au champ électromagnétique. Par exemple l'équation suivante permet de donner une forme gaussienne à un champ électrique oscillant parallèlement à l'axe z à une pulsation ω_0 dans une cellule (i_0, j_0, k_0) :

$$\vec{E}(i_0, j_0, k_0) = \begin{cases} 0 \\ 0 \\ E_0 e^{\left(-\frac{(t-t_0)^2}{\sigma_t}\right)} \end{cases} \quad (2.39)$$

Nous employons la technique de la source dure afin d'injecter un mode dans une structure guidante. Nous imposons un champ \vec{H} dans un plan à l'entrée de la structure guidante. Ce champ présente un profil spatial que nous établissons à l'aide d'un solveur de mode, dont les détails vont maintenant être exposés.

Structure guidante : injection d'un mode

Dans une structure guidante (telle que les guides d'ondes, les fibres optiques...) seuls certains types d'ondes peuvent se propager : on les appelle les modes guidés. Nous pourrions injecter une onde plane à l'entrée de la structure guidante mais cela nécessiterait un long temps de calcul afin d'arriver à une solution qui se propage. Pour économiser ce temps de calcul il est préférable d'injecter directement un mode guidé. Un mode guidé est caractérisé par une constante de propagation β et une distribution des amplitudes des champs caractéristiques \vec{E} et \vec{H} invariante selon la direction de propagation. Pour un mode guidé se propageant selon l'axe z nous pouvons donc présumer la forme des champs :

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \vec{E}(x, y) e^{-i(\beta z - \omega t)} \quad (2.40)$$

$$\vec{H}(x, y, z, t) = \vec{H}(x, y) e^{-i(\beta z - \omega t)} \quad (2.41)$$

Nous avons développé un solveur de mode basé sur la méthode des dif-

férences finies dans le domaine fréquentiel (*Finite-difference in frequency domain, FDFD*) [106] ce qui permet de connaître β et les amplitudes correspondantes $\vec{E}(x, y)$ et $\vec{H}(x, y)$. Cette méthode se base sur une expression matricielle des composantes transverses H_x et H_y du champ magnétique. En combinant les équations de Maxwell-Gauss 2.1a et Maxwell-Ampère 2.9b il est possible d'écrire une équation d'onde sur \vec{H} :

$$\vec{\text{rot}} \left(\varepsilon^{-1} \vec{\text{rot}} \vec{H} \right) = \omega^2 \mu \vec{H} \quad (2.42)$$

Dans le cas d'un milieu linéaire, homogène et isotrope (l.h.i.) ε^{-1} est un scalaire ce qui permet d'écrire :

$$\varepsilon^{-1} \vec{\text{rot}} \vec{\text{rot}} \vec{H} = \omega^2 \mu \vec{H} \quad (2.43)$$

Soit

$$-\varepsilon^{-1} \Delta \vec{H} = \omega^2 \mu \vec{H} \quad (2.44)$$

En projetant selon l'axe x nous avons :

$$-\varepsilon^{-1} \left(\frac{\partial^2 H_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 H_x}{\partial z^2} \right) = \omega^2 \mu_0 H_x \quad (2.45)$$

Comme nous avons présupposé que $\vec{H} = H(x, y)e^{-i(\beta z - \omega t)}$ il vient :

$$\frac{\partial^2 H_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_x}{\partial y^2} + \varepsilon \omega^2 \mu_0 H_x = \beta^2 H_x \quad (2.46)$$

De même en projetant selon l'axe y nous arrivons à :

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_y}{\partial y^2} + \varepsilon \omega^2 \mu_0 H_y = \beta^2 H_y \quad (2.47)$$

La composante H_z est fonction de H_x et H_y et peut être calculée en utilisant l'équation $\text{div} \vec{H} = 0$. Nous pouvons écrire les équations (2.46) et

(2.47) sous forme matricielle :

$$A \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \end{pmatrix} = \beta^2 \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \end{pmatrix} \quad (2.48)$$

où A est une matrice diagonale composée d'opérateurs différentiels A_{11} et A_{22} [106] :

$$A = \begin{pmatrix} A_{11} & 0 \\ 0 & A_{22} \end{pmatrix} \quad (2.49)$$

A. Fallahkhair décrit une méthode qui permet en utilisant les différences finies de remplacer chacun des opérateurs différentiels A_{jk} par une matrice [106]. Cela conduit à une matrice A de dimensions importantes. Par exemple la discrétisation d'une section de $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ avec un pas spatial de 10 nm conduit à $2,5 \cdot 10^5$ cellules. Le vecteur colonne $\begin{pmatrix} H_x \\ H_y \end{pmatrix}$ contenant les coordonnées de H_x discrétisées puis celles de H_y est donc de dimensions $2 \times 2,5 \cdot 10^5$. Quant à la matrice A elle est de dimensions $(2 \times 2,5 \cdot 10^5)^2$ mais avec un grand nombre de 0 : on parle alors de matrice creuse. Pour trouver les valeurs propres et vecteur propres de A nous avons utilisé la librairie MUMPS [107, 108], adaptée au formalisme des matrices creuses. Cela nous permet de trouver la constante de propagation β ainsi que le profil spatial dans le plan transverse (x, y) de H_x , H_y et H_z .

L'utilisation conjointe de la méthode FDFD et la méthode FDTD permet d'adopter le même maillage spatial. Ainsi le profil spatial du champ \vec{H} trouvé par le solveur de mode FDFD est directement utilisable comme source dure dans la méthode FDTD.

Illustration

Pour illustrer la méthode FDFD nous étudions un guide d'onde ruban, présenté figure 2.6, qui est constitué d'un substrat d'indice optique $n = 1,45$ surmonté d'une couche d'indice optique $n = 1,5$. Au dessus de cette couche est présent un ruban d'une largeur de $5 \mu\text{m}$ et d'une hauteur de $0,4 \mu\text{m}$ de même indice optique ($n = 1,5$). Les résultats obtenus par la

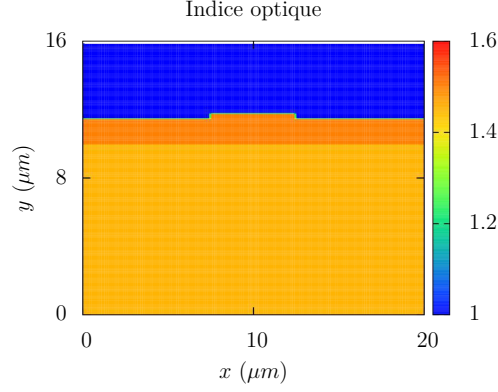


FIGURE 2.6 – Valeurs de l'indice optique n dans le section droite xy d'un guide d'onde

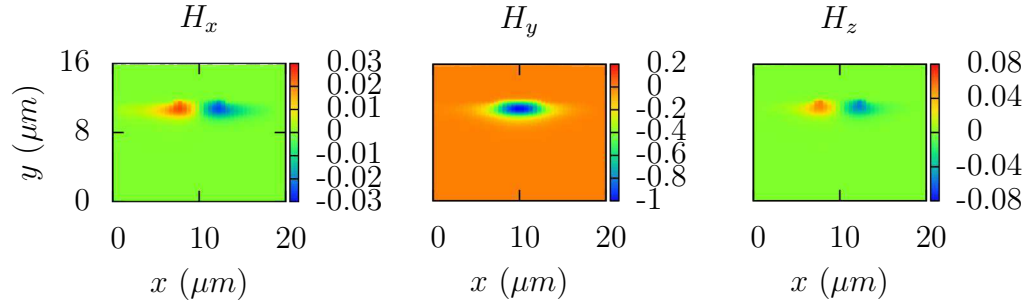


FIGURE 2.7 – Composantes du champ magnétique \vec{H} d'un mode TE ($\beta = 19,2617 \mu\text{m}^{-1}$) calculé par la méthode FDFD dans un guide d'onde dont le profil est présenté figure 3.1

méthode FDFD pour un mode transverse électrique (TE) défini avec une constante de propagation $\beta = 19,26 \mu\text{m}^{-1}$ sont présentés figure 2.7. Un mode TE est un mode de propagation tel que la composante du champ électrique $E_z = 0$, c'est-à-dire que le champ électrique est orthogonal à la direction de propagation. L'amplitude maximale de la composante principale H_y a été fixée égale à 1. Nous pouvons remarquer que le champ électromagnétique est confiné sous le ruban. L'amplitude de H_x peut être considérée comme négligeable par rapport à l'amplitude de H_y .

2.4.2 Champ total/Champ diffusé

Nous développons dans ce paragraphe la modélisation d'une onde plane permettant d'illuminer un objet isolé. Créer une onde plane, qui par définition possède une extension spatiale infinie, dans une boîte de calcul finie, n'est pas direct. Pour cela nous avons implémenté la technique du champ total/champ diffusé (*Total-field/Scattered-field*, *TF/SF*) qui se base sur la linéarité des équations de Maxwell. Cela permet de décomposer les champs électrique total \vec{E}_{tot} et magnétique total \vec{H}_{tot} de la manière suivante :

$$\vec{E}_{tot} = \vec{E}_{inc} + \vec{E}_{diff} \quad (2.50)$$

$$\vec{H}_{tot} = \vec{H}_{inc} + \vec{H}_{diff} \quad (2.51)$$

où \vec{E}_{inc} et \vec{H}_{inc} sont les champs électrique et magnétique incidents se propageant dans un milieu homogène et \vec{E}_{diff} et \vec{H}_{diff} les champs diffusés qui apparaissent lorsque l'onde incidente rencontre des objets de caractéristiques (permittivité ε , perméabilité μ) différentes. Nous détaillons le principe de la méthode TF/SF grâce à un exemple en 1 dimension, puis nous appliquons cette méthode en 2 dimensions avant de généraliser en 3 dimensions.

Principe en 1 dimension

Le principe de la méthode TF/SF est de séparer la zone FDTD en deux zones : une zone où l'on calcule le champ total et une zone où l'on ne calcule que le champ diffusé comme le montre la figure 2.8. Les deux zones sont séparées par une interface non physique où l'on ajoute ou soustrait le champ incident. La figure 2.8 ne présente que la frontière "gauche" où les indices i de la zone de champ diffusé sont inférieurs à ceux de la zone de champ total. Il existe une frontière "droite" où les indices i de la zone de champ diffusé sont supérieurs à ceux de la zone de champ total mais qui n'est pas représentée.

Nous prenons comme exemple le calcul de la composante E_z qui s'obtient par l'équation de Maxwell-Ampère (2.9b). D'après la figure 2.8 le calcul du champ électrique dans la zone de champ total à une coordonnée i_{tf} ne fait

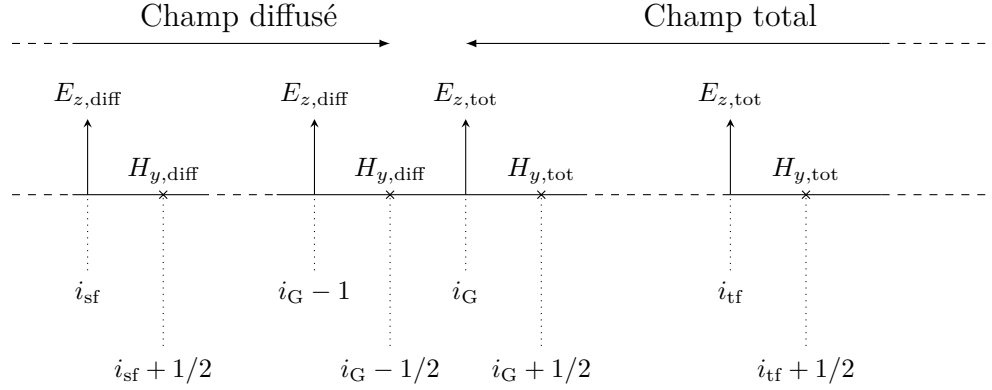


FIGURE 2.8 – Schéma en 1 dimension de la zone frontière gauche entre le champ diffusé et le champ total

intervenir que des champs totaux :

$$E_{z,tot}|_{i_{tf}}^{n+1} = E_{z,tot}|_{i_{tf}}^n + \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta x} \left(H_{y,tot}|_{i_{tf}+1/2}^n - H_{y,tot}|_{i_{tf}-1/2}^n \right) \quad (2.52)$$

De même le calcul du champ électrique dans la zone de champ diffusé ne fait intervenir que des champs diffusés. A une coordonnée située dans la zone champ diffusée i_{sf} :

$$E_{z,diff}|_{i_{sf}}^{n+1} = E_{z,diff}|_{i_{sf}}^n + \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta x} \left(H_{y,diff}|_{i_{sf}+1/2}^n - H_{y,diff}|_{i_{sf}-1/2}^n \right) \quad (2.53)$$

A la zone frontière i_G on obtient le champ de la forme suivante :

$$E_{z,tot}|_{i_G}^{n+1} = E_{z,tot}|_{i_G}^n + \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta x} \left(H_{y,tot}|_{i_G+1/2}^n - H_{y,diff}|_{i_G-1/2}^n \right) \quad (2.54)$$

On constate qu'il y a deux types de champs différents : total et diffusé. Pour maintenir la validité de cette équation de Maxwell, qui doit s'appliquer à un champ de même nature, il est nécessaire de faire une correction à l'aide de l'équation (2.51). Cela permet d'avoir uniquement des champs totaux dans l'équation 2.54 :

$$E_{z,tot}|_{i_G}^{n+1} = E_{z,tot}|_{i_G}^n + \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta x} \left(H_{y,tot}|_{i_G+1/2}^n - H_{y,diff}|_{i_G-1/2}^n \right) - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta x} H_{y,inc}|_{i_G-1/2}^n \quad (2.55)$$

De la même manière l'équation sur le champ $H_{y,diff}$ à la frontière $i_G - 1/2$ s'obtient en effectuant une correction. Cette fois-ci on s'assure que tous les champs soit diffusés :

$$H_{y,diff}|_{i_G-1/2}^{n+1/2} = H_{y,diff}|_{i_G-1/2}^{n-1/2} + \frac{\Delta t}{\mu \Delta x} \left(E_{z,tot}|_{i_G}^n - E_{z,diff}|_{i_G-1}^n \right) - \frac{\Delta t}{\mu \Delta x} E_{z,inc}|_{i_G}^n \quad (2.56)$$

Les équations des champs E_z et H_y peuvent être trouvées de la même manière à la frontière droite. Les champs incidents qui apparaissent dans les équations (2.55) et (2.56) sont des données d'entrées et doivent donc être connus. Pour les calculer nous utilisons une technique présentée par A. Taflove [1] qui va maintenant être détaillée pour un espace en 2 dimensions.

Calcul du champ incident : exemple en 2 dimensions

En deux dimensions la frontière entre le champ total et le champ diffusé est un rectangle. Le calcul du champ incident \vec{E}_{inc} et \vec{H}_{inc} dans la zone en 2D se déroule en deux étapes :

- La première étape consiste à calculer la propagation du champ électromagnétique par la méthode FDTD en 1D selon l'axe supporté par le vecteur d'onde incident k_{inc} .
- La seconde étape est d'extrapoler les champs calculés selon l'axe de propagation en une dimension en considérant que tous les plans perpendiculaires à l'axe de propagation ont la même amplitude de champ (propriété de l'onde plane).

La figure présente de manière géométrique la grille en 2D, repérée par des indices (i, j) et la grille en 1D repérée par un indice m (en rouge). La correspondance entre les deux grilles est fixé à la cellule de coordonnées (i_0, j_0) pour la grille en 2D et à la cellule de coordonnée m_0 pour la grille en 1D. Nous cherchons à calculer le champ électromagnétique au point (i_1, j_1) à partir de la connaissance du champ électromagnétique sur la grille en 1D (en

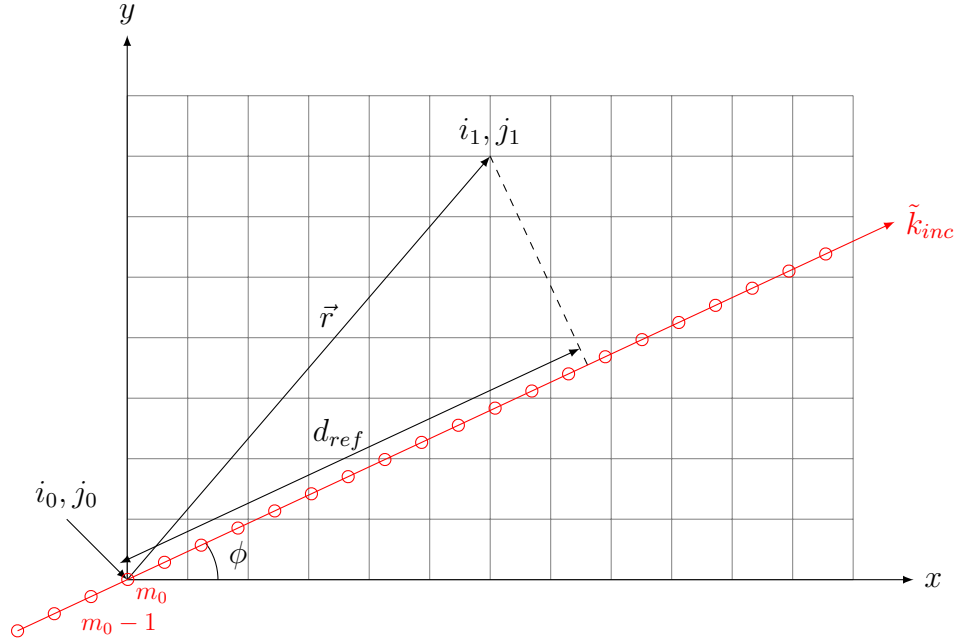


FIGURE 2.9 – Schéma de la grille de calcul en 2D et en 1D

rouge). Pour extrapoler le champ à partir de la grille 1D il faut déterminer la distance d_{ref} qui correspond à la distance de propagation des fronts d'onde entre la cellule (i_0, j_0) et la cellule (i_1, j_1) . Le champ incident se propage selon \vec{k}_{inc} défini avec un angle ϕ par rapport à l'axe x (figure 2.9). En définissant le vecteur unitaire $\tilde{k}_{inc} = \frac{\vec{k}_{inc}}{\|\vec{k}_{inc}\|}$ nous avons :

$$\tilde{k}_{inc} = \cos \phi \vec{u}_x + \sin \phi \vec{u}_y \quad (2.57)$$

Le vecteur \vec{r} a pour coordonnées :

$$\vec{r} = (i_1 - i_0)\vec{u}_x + (j_1 - j_0)\vec{u}_y \quad (2.58)$$

Les fronts d'ondes entre la cellule (i_0, j_0) et la cellule (i_1, j_1) sont séparés d'une distance d_{ref} :

$$d_{ref} = \tilde{k}_{inc} \cdot \vec{r} \quad (2.59)$$

$$= (i_1 - i_0) \cos \phi + (j_1 - j_0) \sin \phi \quad (2.60)$$

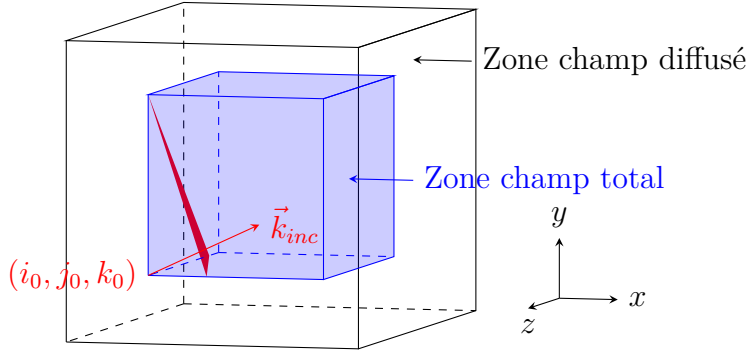


FIGURE 2.10 – Schéma représentant la zone de champ total et la zone de champ diffusé. Les coordonnées (i_0, j_0, k_0) correspondent au point commun entre le champ incident en une dimension et le champ incident calculé en trois dimensions. La direction de propagation est représentée par la flèche. La PML qui entoure la zone de champ totale n'est pas représentée

Comme nous pouvons le remarquer sur la figure 2.9 la distance d_{ref} peut ne pas correspondre à une coordonnées entière m sur l'axe 1D. Dans ce cas nous effectuons une interpolation linéaire du champ entre les points m et $m + 1$.

Généralisation à trois dimensions

La zone frontière à trois dimensions est un parallélépipède rectangle. Nous définissons un point de coordonnées (i_0, j_0, k_0) se situant à l'un des 8 sommets de la zone champ total. Ce point est commun avec le point de coordonnées m_0 correspondant à l'axe de propagation en 1D. La figure 2.10 présente schématiquement les deux zones : champ total et champ diffusé ainsi qu'une onde avec une direction de propagation \vec{k}_{inc} . Un front d'onde (plan en rouge) et le point commun (entre la zone en 3D et l'axe de propagation en 1D) de coordonnées (i_0, j_0, k_0) sont également représentés.

En 2D la direction de propagation est fixée par un angle ϕ . En trois dimensions, 3 angles permettent de fixer la direction de propagation et la polarisation de l'onde incidente comme le montre la figure 2.11. θ est l'angle par rapport à l'axe x , ϕ est l'angle par rapport à l'axe z et ψ est l'angle par rapport à $\vec{k}_{inc} \wedge \vec{z}$ qui définit la polarisation de l'onde incidente avec une

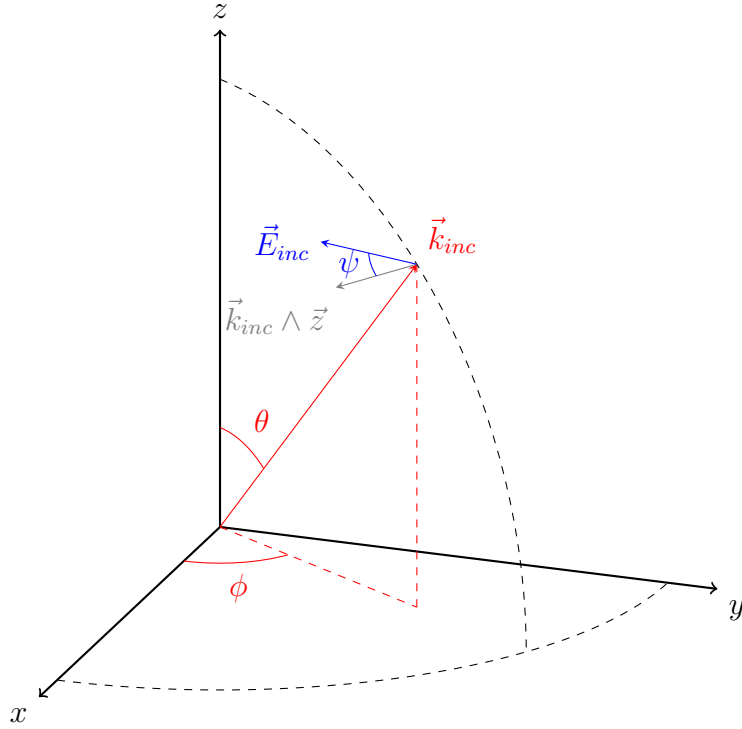


FIGURE 2.11 – Direction et polarisation de l'onde incidente par rapport aux axes x,y,z

valeur comprise entre 0 et 360 degrés.

Le vecteur \vec{r} entre le point commun (i_0, j_0, k_0) et une cellule de coordonnées (i, j, k) s'écrit :

$$\vec{r} = (i - i_0)\vec{u}_x + (j - j_0)\vec{u}_y + (k - k_0)\vec{u}_z \quad (2.61)$$

Le vecteur unitaire \tilde{k}_{inc} ($\tilde{k}_{inc} = \frac{\vec{k}_{inc}}{|\vec{k}_{inc}|}$) qui définit la direction de propagation s'écrit :

$$\tilde{k}_{inc} = \sin \theta \cos \phi \vec{u}_x + \sin \theta \sin \phi \vec{u}_y + \cos \theta \vec{u}_z \quad (2.62)$$

En 3D la distance d_{ref} entre le point commun (i_0, j_0, k_0) et des coordonnées (i, j, k) s'écrit donc en fonction des angles θ et ϕ définit figure 2.11 :

$$d_{ref} = (i - i_0) \sin \theta \cos \phi + (j - j_0) \sin \theta \sin \phi + (k - k_0) \cos \theta \quad (2.63)$$

Chaque composante du champ électrique \vec{E} ou magnétique \vec{H} est décalée par rapport à la cellule de coordonnée (i, j, k) (voir cellule de Yee, figure 2.1). Il faut donc ajouter une correction à la distance d_{ref} différente pour chaque composante :

$$d_{E_x} = d_{ref} + \frac{1}{2} \sin \theta \cos \phi \quad \text{pour } E_x \quad (2.64a)$$

$$d_{E_y} = d_{ref} + \frac{1}{2} \sin \theta \sin \phi \quad \text{pour } E_y \quad (2.64b)$$

$$d_{E_z} = d_{ref} + \frac{1}{2} \cos \theta \quad \text{pour } E_z \quad (2.64c)$$

$$d_{H_x} = d_{ref} + \frac{1}{2} + \frac{1}{2} (\sin \theta \sin \phi + \cos \theta) \quad \text{pour } H_x \quad (2.64d)$$

$$d_{H_y} = d_{ref} + \frac{1}{2} + \frac{1}{2} (\sin \theta \cos \phi + \cos \theta) \quad \text{pour } H_y \quad (2.64e)$$

$$d_{H_z} = d_{ref} + \frac{1}{2} + \frac{1}{2} (\sin \theta \cos \phi + \sin \theta \sin \phi) \quad \text{pour } H_z \quad (2.64f)$$

La distance à prendre en compte par rapport au point m_0 est donc différente pour chaque composante. Pour finir les composantes des champs \vec{E} et \vec{H} sont données par les relations (2.65). Dans ces équation E_{inc} et H_{inc} correspondent aux champs électrique et magnétique calculés sur la grille en 1D.

$$E_{x,inc}|_{i,j,k}^n = E_{inc}|_{d_{E_x}}^n (\cos \psi \sin \phi - \sin \psi \cos \theta \cos \phi) \quad (2.65a)$$

$$E_{y,inc}|_{i,j,k}^n = E_{inc}|_{d_{E_y}}^n (-\cos \psi \cos \phi - \sin \psi \cos \theta \sin \phi) \quad (2.65b)$$

$$E_{z,inc}|_{i,j,k}^n = E_{inc}|_{d_{E_z}}^n (\sin \psi \sin \theta) \quad (2.65c)$$

$$H_{x,inc}|_{i,j,k}^n = H_{inc}|_{d_{H_x}}^n (\sin \psi \sin \phi + \cos \psi \cos \theta \cos \phi) \quad (2.65d)$$

$$H_{y,inc}|_{i,j,k}^n = H_{inc}|_{d_{H_y}}^n (-\sin \psi \cos \phi + \cos \psi \cos \theta \sin \phi) \quad (2.65e)$$

$$H_{z,inc}|_{i,j,k}^n = H_{inc}|_{d_{H_z}}^n (-\cos \psi \sin \theta) \quad (2.65f)$$

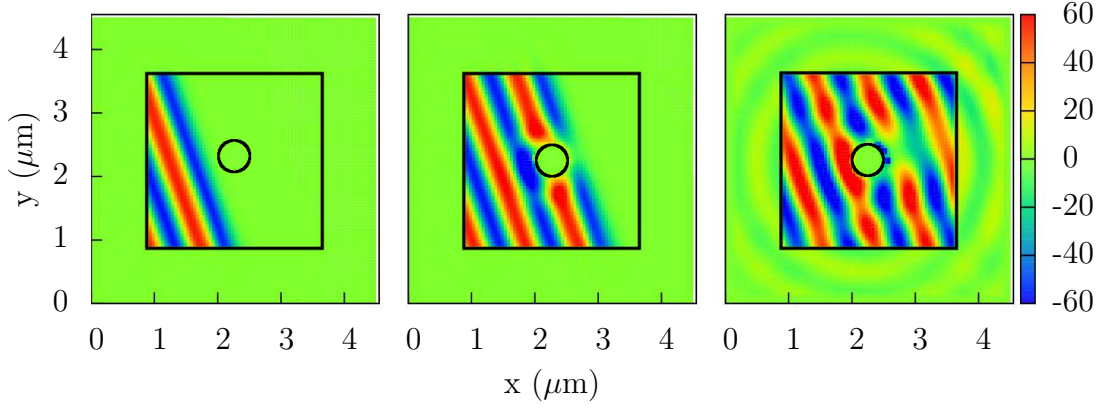


FIGURE 2.12 – Composantes E_y du champ électrique dans un plan (x,y) passant au centre d'une sphère de diamètre 500 nm et d'indice $n = 2$ pour une onde incidente où $\theta = \frac{\pi}{5}$, $\phi = \frac{\pi}{3}$ et $\psi = \frac{\pi}{4}$ à différents instants

Illustration

Afin d'illustrer la méthode TF/SF, nous avons modélisé une sphère, de diamètre 500 nm et d'indice $n = 2$, incluse dans une matrice d'indice $n = 1.5$. L'onde incidente se propageant dans la zone champ total est définie par $\theta = \frac{\pi}{5}$, $\phi = \frac{\pi}{3}$ et $\psi = \frac{\pi}{4}$, ce qui assure que la composante E_y est majoritaire (equation (2.65)). Pour trois nombres de pas de temps différents ($N=1000$, $N=1400$, $N=3000$), la valeur instantanée de la composante \vec{E}_y est représentée sur la figure 2.12 dans le plan (xy) passant au centre de la sphère. La zone champ total ainsi que la sphère sont délimitées par un contour noir. Pour $N=1000$, l'onde n'est pas encore arrivée à la sphère, ce qui permet de remarquer que le champ incident est nul dans la zone champ diffusé. Pour $N=1400$, l'onde a passé la sphère et nous pouvons voir une onde réfléchie qui perturbe le champ incident. Pour $N=3000$ les cercles dans la zone champ diffusé correspondent au champ diffusé par la sphère.

Pour ce calcul, les paramètres suivants ont été choisis :

- Nombre de Courant $S = 0.1$
- Pas d'espace (dans les trois directions x, y, z) : $\Delta = 50$ nm
- Dimensions de la zone de calcul : 91Δ

- $\|\vec{E}_{inc}(t)\| = \sin(\omega t)$
- Longueur d'onde du champ incident : $\lambda = 1000$ nm

Avantages et limitation de la méthode TF/SF

Les avantages de la techniques TS/SF sont nombreux :

- Il est possible d'étudier uniquement le champ diffusé par un objet ce qui n'est pas possible avec d'autres méthodes comme la source dure où le champ diffusé est toujours superposé au champ incident.
- Seul le champ diffusé est en contact avec la PML. Le champ diffusé a une amplitude moins importante que permet de réduire les erreurs de calcul dues aux réflexions parasites à l'interface de la zone FDTD/PML.
- La direction de propagation et la polarisation de l'onde incidente sont fixées par 3 angles permettant de générer une onde avec une direction de propagation quelconque.

La principale limitation de la méthode TF/SF présentée est qu'elle ne permet pas d'introduire une interface en contact avec la frontière TF/SF car cela génère des ondes parasites. L'objet à modéliser doit entièrement être inclus dans la zone champ total.

2.5 Amplitude des champs électromagnétiques

La méthode FDTD donne accès aux valeurs instantanées des champs électriques \vec{E} et magnétiques \vec{H} . Lorsque le champ électromagnétique est polychromatique, l'amplitude des champs \vec{E} et \vec{H} à une fréquence f peut être connue en réalisant une transformée de Fourier. En prenant l'exemple du champ électrique \vec{E} , la transformée de Fourier est définie par :

$$\vec{E}(\vec{r}, f) = \frac{1}{T} \int_0^T \vec{E}(\vec{r}, t) e^{i2\pi f t} dt \quad (2.66)$$

avec $T \rightarrow \infty$. La discrétisation temporelle du champ électromagnétique par la méthode FDTD nous permet de connaître uniquement $\vec{E}(\vec{r}, t)$ à des instants t_n discrets où t_n est défini par $t_n = n\Delta t$ avec Δt le pas de temps et n

est un entier. De plus nous faisons un calcul sur un nombre fini N de pas de temps, ce qui impose que $T = N\Delta t$. La fréquence du champ électrique \vec{E} peut donc être connu entre une fréquence minimale $f_{min} = \frac{1}{N\Delta t}$ et une fréquence maximal $f_{max} = \frac{1}{\Delta t}$. La transformée de Fourier discrète impose que les fréquences pouvant être connues soient des multiples de la fréquences minimale f_{min} . En posant $f_k = kf_{min}$ où k est un entier, la transformée de Fourier discrète du champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}, f_k) = \frac{1}{N\Delta t} \sum_{n=1}^N \vec{E}(\vec{r}, n\Delta t) e^{i2\pi f_k t_n \Delta t} \quad (2.67)$$

En remarquant que le produit $f_k t_n$ peut s'écrire de la manière suivante :

$$f_k t_n = kf_{min} n\Delta t = k \frac{1}{N\Delta t} n\Delta t = k \frac{n}{N} \quad (2.68)$$

l'équation (2.67) devient :

$$\vec{E}(\vec{r}, f_k) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \vec{E}(\vec{r}, n\Delta t) e^{i\frac{2\pi kn}{N}} \quad (2.69)$$

La transformée de Fourier discrète peut donner des résultats différents par rapport à la transformée de Fourier continue, notamment si le nombre total N d'itérations n'est pas assez élevée. Pour illustrer cela l'amplitude de la transformée de Fourier discrète d'une fonction $f(t) = \sin(\omega_0 t)$, avec $\omega_0 = 3.10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ est présentée figure 2.13 pour deux nombres d'itérations différents ($N = 5000$ et $N = 10000$). Dans les deux cas le pas de temps est $\Delta t = 10^{-16} \text{ s}$. Pour les deux nombre d'itérations, nous trouvons une amplitude de 1 à la pulsation ω_0 , avec des pics secondaires pour $\omega \neq \omega_0$. L'amplitude de ces pics diminue lorsque le nombre de pas de temps N augmente. Ces pics secondaires apparaissent car, contrairement à la définition de la transformée de Fourier classique, le calcul est borné dans le temps et nous utilisons une somme discrète au lieu d'une intégrale. Cela peut compliquer l'analyse notamment pour un champ composé de deux pulsations de valeurs proches et d'amplitude différente. Pour un nombre N de pas de temps tendant vers l'infini, le résultat serait celui de la transformée de Fourier conti-

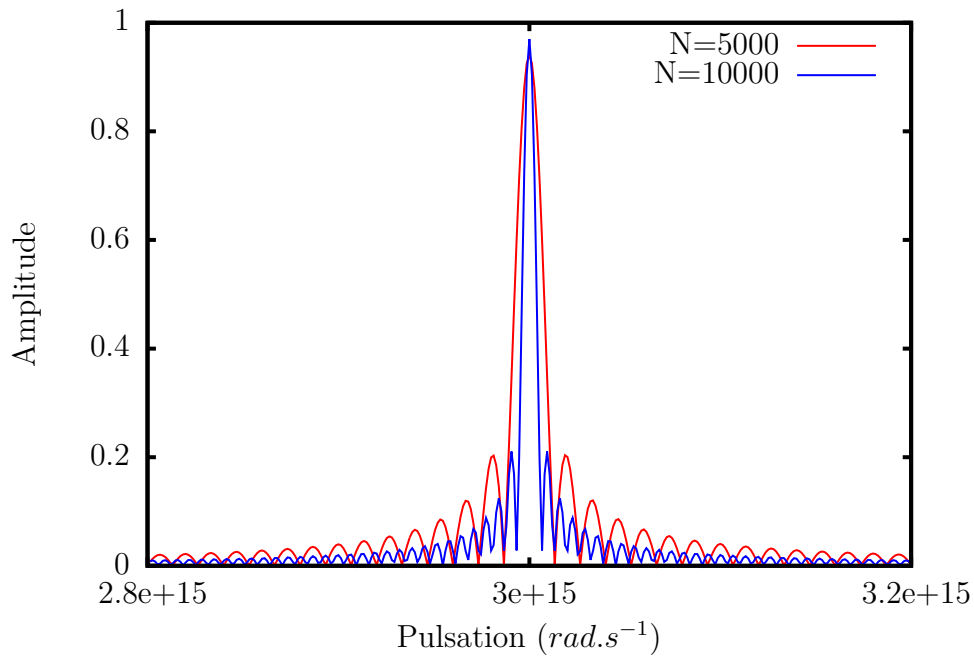


FIGURE 2.13 – Module de la transformée de Fourier (*i.e* amplitude) de la fonction $f(t) = \sin(\omega_0 t)$ avec $t = n\Delta t$, $0 < n < N$, $\omega_0 = 3.10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ et $\Delta t = 10^{-16} \text{ s}$, pour deux nombres de pas de temps ($N = 5000$ et $N = 10000$).

nue, c'est à dire un pic centré sur ω_0 . Il conviendra donc s'assurer que N est suffisamment grand pour que l'amplitude des pics secondaires soient faibles.

Une des grandeurs que nous serons amené à analyser est le vecteur de Poynting \vec{R} qui est homogène à une puissance par unité de surface (W.m^2). Pour relier cette grandeur à des résultats expérimentaux, il est intéressant de connaître sa valeur moyennée dans le temps. Dans nos simulations, la valeur moyenne du vecteur de Poynting \vec{R} à différentes fréquences f_k est obtenue à partir du champ électrique \vec{E} et du champ magnétique \vec{H} .

$$\vec{R}(\vec{r}, f_k) = \vec{E}(\vec{r}, f_k) \wedge \vec{H}(\vec{r}, f_k) \quad (2.70)$$

2.6 Milieux dispersifs et milieux à gain

Les équations de Maxwell (2.10a) à (2.10f) présentées jusqu'à maintenant ne permettent de traiter que des milieux possédant une permittivité ε et une perméabilité μ indépendantes de la longueur d'onde (milieu statique). Ce paragraphe a pour but d'étendre la méthode FDTD afin de modéliser un milieu dispersif ayant une permittivité dépendant de la pulsation $\varepsilon(\omega)$. Dans toute la suite nous considérons que la perméabilité μ est égale à la perméabilité du vide μ_0 . Les milieux dispersifs sont courants qu'ils soient linéaires, c'est-à-dire que la réponse du matériau est proportionnelle à \vec{E} , tels que les fibres optiques à gradient d'indices, ou non linéaires, c'est-à-dire que la réponse du matériau n'est pas proportionnelle à \vec{E} tels que les matériaux présentant un effet Pockels (χ^2) ou Kerr (χ^3) non négligeable. Bien que la méthode présentée par la suite permet de modéliser des matériaux linéaires et non linéaires nous restreignons notre étude aux seuls matériaux linéaires et en particulier aux milieux métalliques, présentés en 2.6.1. La deuxième partie présente la modélisation d'un milieu à gain où l'amplitude d'un signal peut être amplifié lorsque ce milieu est excité par une source externe (pompe). Nous adopterons une approche semi-classique où les électrons possèdent une énergie quantifiée (niveaux d'énergie) alors que le champ électromagnétique est décrit de manière classique.

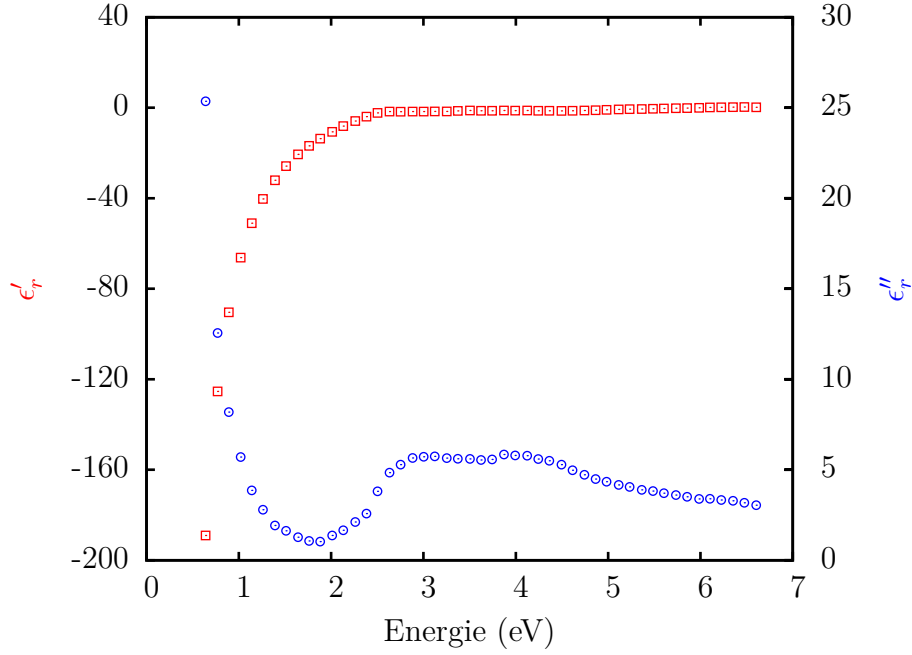


FIGURE 2.14 – Partie réelle ε'_r et imaginaire ε''_r de la permittivité relative de l'or issues des données expérimentales de Johnson-Christy [109]

2.6.1 Les métaux

Les métaux, tels que l'or ou l'argent, présentent une permittivité complexe ε dépendante de la pulsation ω . On définit la permittivité relative complexe ε_r par $\varepsilon = \varepsilon_r \varepsilon_0$ qui s'écrit en fonction d'une partie réelle ε'_r et d'une partie imaginaire ε''_r :

$$\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon'_r(\omega) - i\varepsilon''_r(\omega) \quad (2.71)$$

La partie réelle ε'_r et la partie imaginaire ε''_r de la permittivité relative ε_r de l'or sont représentées en fonction de l'énergie (figure 2.14) d'après les données de P.B. Johnson et R.W. Christy [109]. La modélisation d'un métal par la méthode FDTD nécessite l'établissement d'une expression de la permittivité relative diélectrique. Cela va permettre l'écriture d'une équation différentielle s'appliquant à la polarisation. La première partie sera consacrée au modèle de Drude qui permet d'estimer la permittivité de diélectriques des métaux en supposant que les électrons de cœurs sont liés au noyau et que

seuls les électrons libres de la bande de conduction peuvent être excités (transition intrabandes). Ce modèle permet de reproduire la permittivité de l'or jusqu'à une certaine longueur d'onde. Cependant dans les métaux nobles, les électrons de cœurs sont aussi excités vers la bande de conduction (transition interbandes) et il est alors nécessaire d'utiliser le modèle de Drude-Lorentz.

Le modèle de Drude

Le modèle de Drude décrit un métal comme un réseau d'ions fixes entouré d'un nuage d'électrons. Les électrons sont décrits comme des particules classiques de masse m_e et de charge $-e$. Nous notons $\vec{r}(t)$ le déplacement d'un électron induit par un champ électrique autour de sa position moyenne. Le modèle de Drude fait l'hypothèse que les électrons subissent des collisions électrons-électrons et électrons-phonons, ce qui a pour conséquence d'introduire une force de frottement du type $F_f = -\gamma m_e \frac{d\vec{r}}{dt}$ où γ est un terme d'amortissement inversement proportionnel au temps moyen τ entre deux collisions ($\gamma = \frac{1}{\tau}$). Un champ électromagnétique exerce sur l'électron une force de Lorentz \vec{F}_L :

$$\vec{F}_L(t) = -e(\vec{E}(t) + \vec{v} \wedge \vec{B}(t)) \quad (2.72)$$

Nous pouvons négliger la contribution du terme $\vec{v} \wedge \vec{B}$ car la vitesse de l'électron v est négligeable devant la vitesse de la lumière ($v \ll c$). L'équation de la dynamique appliquée à un électron s'écrit alors :

$$m_e \frac{d^2 \vec{r}(t)}{dt^2} = -e \vec{E}(\vec{r}, t) - \gamma m_e \frac{d\vec{r}(t)}{dt} \quad (2.73)$$

Nous pouvons réécrire cette équation en introduisant le moment dipolaire $\vec{\mu}$ qui est défini par $\vec{\mu} = -e\vec{r}$.

$$m_e \frac{d^2 \vec{\mu}(\vec{r}, t)}{dt^2} = e^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \gamma m_e \frac{d\vec{\mu}(\vec{r}, t)}{dt} \quad (2.74)$$

Nous pouvons introduire la polarisation \vec{P} qui est la grandeur macroscopique correspondant à la somme, par unité de volume, des moments dipolaires

$\vec{\mu}$ microscopiques. On a donc $\vec{P} = n_e \vec{\mu}$ où n_e est le nombre d'électrons par unité de volume. Ainsi l'équation 2.74 s'écrit :

$$m_e \frac{d^2 \vec{P}(\vec{r}, t)}{dt^2} = n_e e^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \gamma m_e \frac{d\vec{P}(\vec{r}, t)}{dt} \quad (2.75)$$

Étudions ce problème en régime harmonique. Le champ électrique qui induit le déplacement des électrons s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}) \exp(i\omega t) \quad (2.76)$$

De ce fait, dans le cas de la réponse harmonique, la polarisation \vec{P} peut s'écrire sous la forme :

$$\vec{P}(\vec{r}, \omega) = -\frac{n_e e^2}{m_e} \frac{1}{\omega^2 - i\gamma\omega} \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.77)$$

Dans un milieu linéaire, homogène et isotrope, la relation entre la polarisation \vec{P} et le champ électrique \vec{E} s'exprime à l'aide de la permittivité relative ε_r : $\vec{P} = \varepsilon_0 (\varepsilon_r(\omega) - 1) \vec{E}$. Dans le cadre du modèle de Drude nous définissons ε_r^D par identification avec l'équation (2.77) :

$$\varepsilon_r^D(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\gamma\omega} \quad (2.78)$$

où la pulsation plasma ω_p est donnée par $\omega_p^2 = n_e e^2 / m_e \varepsilon_0$.

La partie réelle ε'_r et la partie imaginaire ε''_r s'écrivent donc :

$$\varepsilon'_r(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad (2.79)$$

$$\varepsilon''_r(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega^3 + \gamma^2 \omega} \quad (2.80)$$

Nous comparons maintenant la permittivité relative issue du modèle de Drude ε_r^D avec une permittivité relative expérimentale de l'or extraite de [109] dans la figure 2.15. Nous avons ajusté les paramètres suivants : $\omega_p = 1,35.10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$ et $\gamma = 1,08.10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$ par un algorithme génétique. Le modèle de Drude ne permet pas de reproduire la permittivité de manière

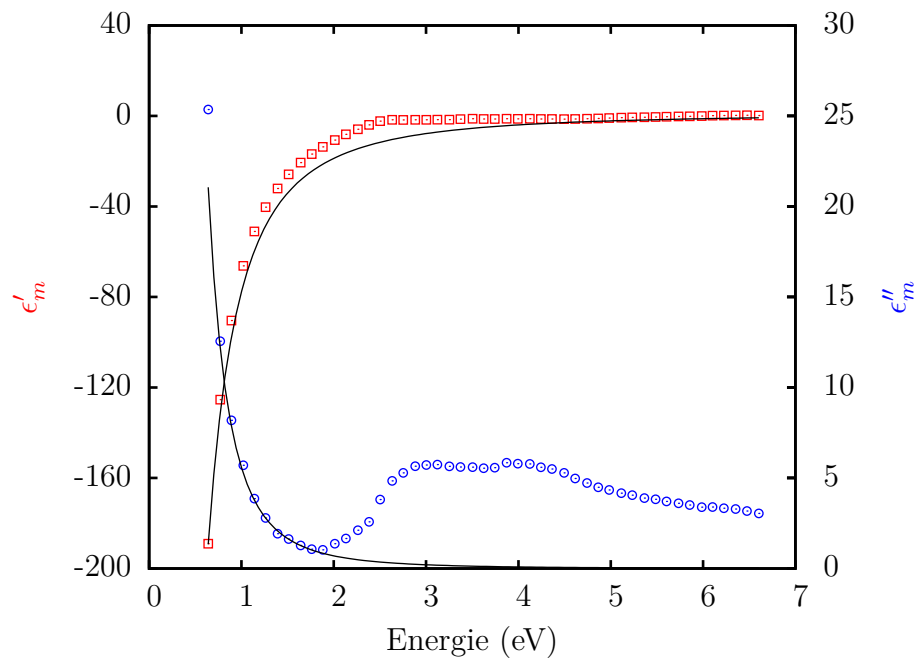


FIGURE 2.15 – Comparaison de la permittivité relative (partie réelle et imaginaire) pour l'or entre les données expérimentales de Johnson-Christy (symboles) et le modèle de Drude (lignes) ($\omega_p = 1,35 \cdot 10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$, $\gamma = 1,08 \cdot 10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$)

correcte pour une énergie supérieure à 1.8 eV. La description peut être améliorée avec le modèle de Drude-Lorentz qui consiste à ajouter un ou plusieurs oscillateurs de Lorentz au modèle de Drude.

Le modèle de Drude-Lorentz

Le modèle de Lorentz (ou modèle de l'électron élastiquement lié) ajoute une force de rappel $\vec{F}_r = -m_e\omega_0^2\vec{r}$ (ω_0 étant la pulsation propre) à la force de frottement $\vec{F}_f = -\gamma m_e \frac{d\vec{r}}{dt}$ considérée dans le modèle de Drude. Ainsi l'équation de la dynamique s'écrit :

$$m_e \frac{d^2\vec{r}(t)}{dt^2} = q\vec{E}(t) - \gamma m_e \frac{d\vec{r}(t)}{dt} - m_e\omega_0^2\vec{r}(t) \quad (2.81)$$

En appliquant le même raisonnement que dans le paragraphe précédent, nous arrivons à une expression de la permittivité relative ε_r^L dans le cas du modèle de Lorentz :

$$\varepsilon_r^L(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 - \omega_0^2) - i\omega\gamma} \quad (2.82)$$

Dans le cadre du modèle de Drude-Lorentz nous ajoutons la permittivité du modèle de Drude ε_r^D à celle du modèle de Lorentz ε_r^L . Remarquons que le modèle de Drude est un cas particulier du modèle de Lorentz possédant une pulsation propre ω_0 nulle. Plusieurs oscillateurs de Lorentz peuvent être nécessaires pour reproduire la permittivité de l'or. Chaque oscillateur de Lorentz i est alors pondéré par une force d'oscillateur f_i . Dans ce cas la permittivité du modèle de Drude-Lorentz ε_r^{DL} s'écrit :

$$\varepsilon_r^{DL}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\gamma\omega} + \sum_i \frac{f_i\omega_p^2}{(\omega^2 - \omega_i^2) - i\omega\gamma_i} \quad (2.83)$$

Pour reproduire la fonction diélectrique de l'or nous utilisons 5 oscillateurs de Lorentz en plus de Drude dont les paramètres, trouvés par un algorithme de type génétique, sont répertoriés tableau 2.1. Les parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique expérimentale et celles issues du modèle de Drude-Lorentz avec 5 oscillateurs de Lorentz sont présentées figure 2.16.

Oscillateur	f_i	$\hbar\omega_i$ (eV)	$\hbar\gamma_i$ (eV)
Lorentz $n^\circ 1$	0,3742	6,527	1,754
Lorentz $n^\circ 2$	0,7300	4,604	2,645
Lorentz $n^\circ 3$	0,2267	3,295	1,540
Lorentz $n^\circ 4$	0,4367	16,33	6,084
Lorentz $n^\circ 5$	1,415	11,78	1,812
Oscillateur		$\hbar\omega_p$ (eV)	$\hbar\gamma$ (eV)
Drude		8.485	$7,551.10^{-2}$

TABLE 2.1 – Valeurs des différents paramètres du modèle de Drude-Lorentz trouvées à l’aide d’un algorithme génétique.

L’implémentation la permittivité relative ε_r^{DL} dans la méthode FDTD passe par l’établissement d’une équation différentielle sur la densité de polarisation \vec{P} . Le lien entre \vec{P} et le champ électrique \vec{E} est défini par $\vec{P} = \varepsilon_0(\varepsilon_r - 1)\vec{E}$. Nous pouvons remplacer ε_r par l’expression trouvée dans le cas du modèle de Drude et du modèle de Lorentz :

— Dans le cas du modèle de Drude, nous avons

$$\vec{P}^D(\vec{r}, \omega) = -\varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\gamma\omega} \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.84)$$

Cette équation peut se réécrire en introduisant la conductivité électrique σ_e :

$$\vec{P}^D(\vec{r}, \omega) = \left(-\varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\gamma(i\omega + \gamma)} + \frac{\sigma_e}{i\omega} \right) \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.85)$$

où la conductivité électrique est définie par $\sigma_e = \frac{\varepsilon_0\omega_p^2}{\gamma}$. La polarisation de Drude \vec{P}^D se décompose donc en deux polarisation \vec{P}_1^D et \vec{P}_2^D dont les équations sont :

$$\vec{P}_1^D(\vec{r}, \omega) = -\varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\gamma(i\omega + \gamma)} \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.86)$$

$$\vec{P}_2^D(\vec{r}, \omega) = \frac{\sigma_e}{i\omega} \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.87)$$

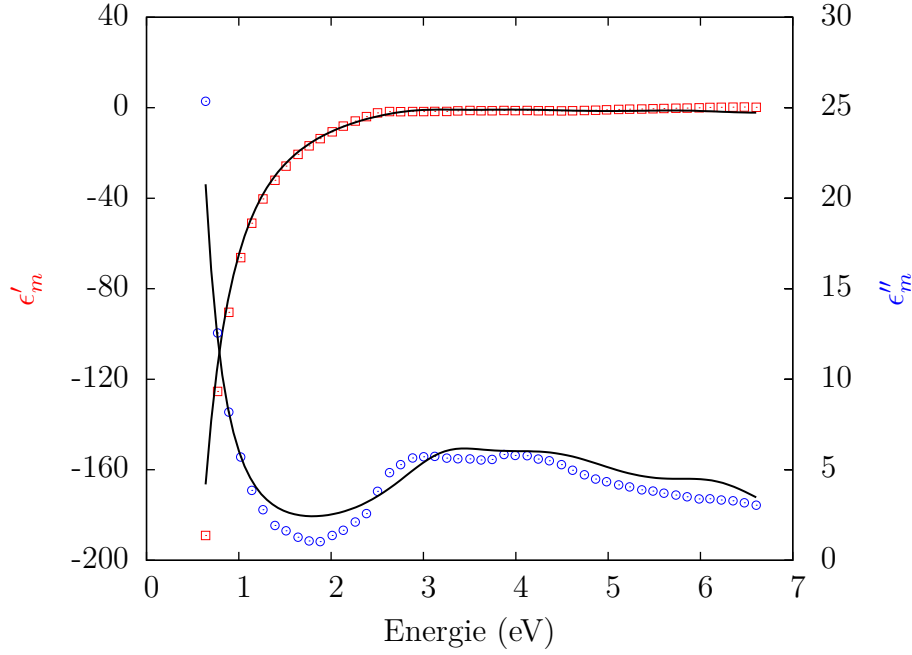


FIGURE 2.16 – Comparaison de la permittivité relative (partie réelle et imaginaire) pour l'or entre les données expérimentales de Johnson-Christy (symboles) et le modèle de Drude-Lorentz (lignes) à 5 oscillateurs de Lorentz

Soit :

$$i\gamma\omega\vec{P}_1^D(\vec{r},\omega) + \gamma^2\vec{P}_1^D(\vec{r},\omega) = -\varepsilon_0\omega_p^2\vec{E}(\vec{r},\omega) \quad (2.88)$$

et

$$i\omega\vec{P}_2^D(\vec{r},\omega) = \sigma_e\vec{E}(\vec{r},\omega) \quad (2.89)$$

En appliquant une transformée de Fourier inverse de chaque terme, (2.88) devient :

$$\frac{\partial\vec{P}_1^D(\vec{r},t)}{\partial t} + \gamma\vec{P}_1^D(\vec{r},t) = -\frac{\varepsilon_0\omega_p^2}{\gamma}\vec{E}(\vec{r},t) \quad (2.90)$$

et (2.89) devient :

$$\frac{\partial\vec{P}_2^D(\vec{r},t)}{\partial t} = \sigma_e\vec{E}(\vec{r},t) \quad (2.91)$$

— Dans le cas du modèle de Lorentz, pour un oscillateur j , nous avons :

$$\vec{P}_j^L(\vec{r}, \omega) = \varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 - \omega_j^2) + i\gamma_j \omega} \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.92)$$

En appliquant une transformée de Fourier inverse de chaque termes nous arrivons à :

$$\frac{d^2 \vec{P}_j^L(\vec{r}, t)}{dt^2} + \gamma_j \frac{d\vec{P}_j^L(\vec{r}, t)}{dt} + \omega_j^2 \vec{P}_j^L(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 \omega_p^2 \vec{E}(\vec{r}, t) \quad (2.93)$$

Les équations (2.90) et (2.93) vont être discrétisées dans le temps par la méthode des différences finies et devront être calculées pour chaque pas de temps. Dans l'espace, la grille de la polarisation \vec{P} est identique à la grille du champ électrique \vec{E} selon la cellule de Yee car \vec{P} est proportionnel à \vec{E} . De même dans le temps la polarisation est calculée aux mêmes instants que le champ électrique. Par exemple la discrétisation de la composante selon z de la polarisation de l'équation (2.93) donne :

$$\begin{aligned} & \frac{P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} - 2P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n + P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n-1}}{\Delta t^2} \\ & + \gamma_j \frac{P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} - P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n-1}}{2\Delta t} \\ & + \omega_j^2 P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n = \varepsilon_0 \omega_p^2 E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n \end{aligned} \quad (2.94)$$

Le calcul de P_z^L à l'instant $n+1$ peut donc se faire en connaissant P_z^L aux instants n et $n-1$ et E_z à l'instant n :

$$\begin{aligned} P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} = \frac{1}{\frac{1}{\Delta t^2} + \frac{\gamma_j}{2\Delta t}} & \left[\varepsilon_0 \omega_p^2 E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n - P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n \left(\omega^2 - \frac{2}{\Delta t^2} \right) \right. \\ & \left. - P_z^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n-1} \left(\frac{1}{\Delta t^2} - \frac{\gamma_j}{2\Delta t} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.95)$$

Il faut noter que la discrétisation de ces équations ajoute une contrainte supplémentaire sur le pas de temps Δt . La polarisation, qui possède sa période propre $T_j = \frac{2\pi}{\omega_j}$, doit être résolue avec suffisamment de précision afin d'assurer la stabilité de l'algorithme. P.G. Petropoulos [110] donne le critère

suivant pour un oscillateur de Lorentz :

$$\Delta t < \frac{T_{min}}{100} \quad (2.96)$$

où T_{min} est la période minimale présente dans le système.

En considérant les polarisations du modèle de Drude et de Lorentz l'équation de Maxwell-Ampère (2.9b) s'écrit :

$$\vec{\text{rot}} \vec{H} = \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}_1^D}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}_2^D}{\partial t} + \sum_i \frac{\partial P_i^L}{\partial t} \quad (2.97)$$

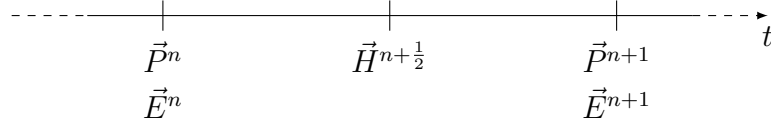
D'après l'équation 2.91 il vient :

$$\vec{\text{rot}} \vec{H} = \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \sigma \vec{E} + \frac{\partial \vec{P}_1^D}{\partial t} + \sum_j \frac{\partial P_j^L}{\partial t} \quad (2.98)$$

L'équation (2.98) est discrétisée par la méthode FDTD. Elle permet de calculer l'évolution temporelle du champ électrique \vec{E} . Dans le temps la discrétisation de cette équation est donnée par :

$$\begin{aligned} \vec{\text{rot}} \vec{H}|^{n+\frac{1}{2}} = & \varepsilon_0 \frac{\vec{E}|^{n+1} - \vec{E}|^n}{\Delta t} + \sigma \frac{\vec{E}|^{n+1} + \vec{E}|^n}{2} \\ & + \frac{\vec{P}_1^D|^{n+1} - \vec{P}_1^D|^n}{\Delta t} + \sum_j \frac{P_j^L|^{n+1} - P_j^L|^n}{\Delta t} \end{aligned} \quad (2.99)$$

Nous pouvons noter que le terme $\frac{\vec{E}|^{n+1} + \vec{E}|^n}{2}$ permet de respecter une différence centrée dans le temps en $n + \frac{1}{2}$, et donc une erreur de discrétisation d'ordre 2. Par exemple le calcul de la composante E_z à l'instant $n + 1$ est

FIGURE 2.17 – Schéma du calcul dans le temps de \vec{E} , \vec{H} et \vec{P}

donnée par :

$$E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} = \frac{1}{\frac{\varepsilon_0}{\Delta t} + \frac{\sigma}{2}} \left[E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n \left(\frac{\varepsilon_0}{\Delta t} - \frac{\sigma}{2} \right) + \frac{H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_y|_{i-\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} \right. \\ \left. - \frac{H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_x|_{i,j-\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} \right. \\ \left. - \frac{P_{1,z}^D|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} - P_{1,z}^D|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta t} \right. \\ \left. - \sum_j \frac{P_{j,z}^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} - P_{j,z}^L|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta t} \right] \quad (2.100)$$

Le schéma 2.17 présente les instants de calcul des grandeurs \vec{E} , \vec{H} et \vec{P} . Ce moyen de simuler un milieu dispersif est connu sous le nom d'ADE (*auxiliary differential equation*) car $\varepsilon(\omega)$ est introduit par des équations différentielles (2.90) et (2.93) portant sur la polarisation \vec{P} .

2.6.2 Description électronique d'un milieu à gain

Un milieu à gain est un milieu qui permet d'amplifier la lumière le traversant. L'intensité d'une onde électromagnétique qui se propage dans un tel milieu augmente le long de son parcours. Un milieu à gain contient des objets émetteurs/absorbeurs (atomes, ions, boîte quantique...) que l'on décrit par des niveaux d'énergies. La description d'un milieu à gain s'appuie, comme pour les métaux, par l'introduction de polarisations \vec{P} . L'équation classique gouvernant l'évolution temporelle de la polarisation \vec{P} est obtenue suivant le modèle de Lorentz. Dans ce cadre, l'équation de la dynamique d'un électron

de charge q élastiquement lié subissant une force de rappel $-m_e\omega_0^2\vec{r}$ et une force de frottement $-\gamma m_e \frac{d\vec{r}}{dt}$ est :

$$m_e \frac{d^2\vec{r}}{dt^2} + \gamma m_e \frac{d\vec{r}}{dt} + m_e\omega_0^2\vec{r} = q\vec{E} \quad (2.101)$$

En introduisant la polarisation $\vec{P} = Nq\vec{r}$, ce qui permet le passage d'une description microscopique à une description macroscopique, avec N le nombre d'électrons par unité de volume, l'équation 2.101 devient :

$$\frac{d^2\vec{P}}{dt^2} + \gamma \frac{d\vec{P}}{dt} + \omega_0^2\vec{P} = N \frac{q^2}{m_e} \vec{E} \quad (2.102)$$

L'équation précédente 2.102 est une description classique qu'il est possible d'améliorer afin d'arriver à décrire la polarisation \vec{P} d'une transition réelle. Cela passe par quelques modifications :

- Le nombre N d'électrons par unité de volume est remplacé par la différence d'électrons $N_i - N_j$ prenant en compte le dipôle formé par la paire électron-trou entre les deux niveaux i et j .
- Le coefficient de frottement γ est remplacé par un coefficient $\Delta\omega_{ij}$ prenant en compte les pertes radiatives, non-radiatives ainsi que les pertes par collisions de la transition entre les niveaux i et j . En effet La polarisation est une grandeur macroscopique qui décrit un grand nombre de dipôles (tous identique). Le terme de collision traduit le déphasage entre ces dipôles.
- Le terme $\frac{q^2}{m_e}$ est remplacé par une constante κ_{ij} , dépendante de la transition entre les niveaux i et j , de la pulsation correspondant ω_{ij} ainsi que de la permittivité du milieu ε_r , définie par [111] :

$$\kappa_{ij} = \frac{6\pi\varepsilon_0 c^3}{\tau_{ij}\omega_{ij}^2 \sqrt{\varepsilon_r}} \quad (2.103)$$

Nous traitons l'exemple de deux niveaux 1 et 2 d'énergie E_1 et E_2 et ayant respectivement une population d'électrons N_1 et N_2 présentés figure 2.18. La polarisation \vec{P}_{12} induite par la différence de populations d'électrons

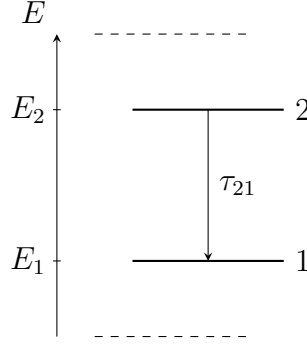


FIGURE 2.18 – Schéma d'un système à deux niveaux

entre le niveau 1 et 2 obéit donc à :

$$\frac{d^2 \vec{P}_{12}(\vec{r}, t)}{dt^2} + \Delta\omega_{12} \frac{d\vec{P}_{12}(\vec{r}, t)}{dt} + \omega_{12}^2 \vec{P}_{12}(\vec{r}, t) = \kappa_{12} (N_1(\vec{r}, t) - N_2(\vec{r}, t)) \vec{E}(\vec{r}, t) \quad (2.104)$$

La polarisation \vec{P}_{12} apparaît alors dans l'équation Maxwell-Ampère :

$$\vec{\text{rot}} \vec{H} = \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}_{12}}{\partial t} \quad (2.105)$$

Nous décrivons maintenant l'évolution temporelle de la population des niveaux 1 et 2. Ces niveaux peuvent être entourés par d'autres niveaux mais dont l'évolution temporelle ne sera pas décrite ici. Pour rendre compte de ces autres niveaux nous introduisons 4 termes : A qui englobe toutes les transitions venant peupler le niveau 2, B qui englobe les transitions qui vident le niveau 2 (excepté la transition $2 \rightarrow 1$), C qui englobe les transitions qui peuplent le niveau 1 (excepté la transition $2 \rightarrow 1$) et D qui englobe toutes les transitions qui vident le niveau 1. Les processus d'émission induite et d'absorption peuvent être décrits par un terme proportionnel au champ électrique \vec{E} et à la dérivée de la polarisation \vec{P} par rapport au temps t : $\vec{E} \frac{d\vec{P}}{dt}$ [111]. Ce terme représente la densité volumique de photons par unité

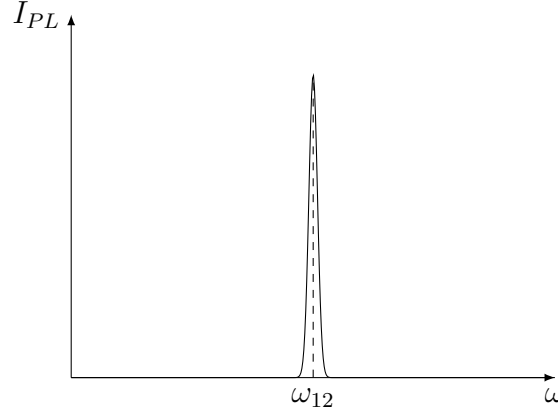


FIGURE 2.19 – Présentation schématique d'un spectre de PL

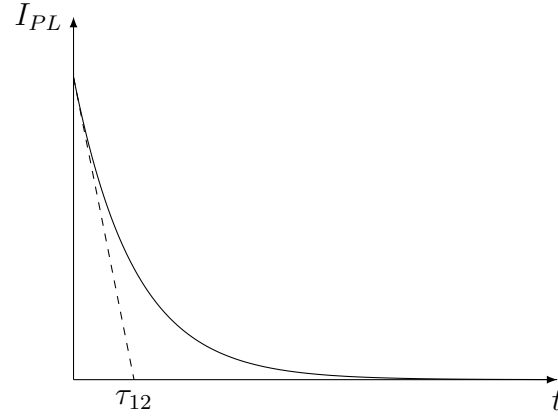


FIGURE 2.20 – Présentation schématique d'un déclin de PL

de temps ($\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$). Ainsi les équations du niveau 1 et 2 peuvent s'écrire :

$$\begin{aligned} \frac{dN_2(\vec{r}, t)}{dt} &= + \frac{1}{\hbar\omega_{12}} \vec{E}(\vec{r}, t) \frac{dP_{12}(\vec{r}, t)}{dt} - \frac{N_2(\vec{r}, t)}{\tau_{21}} + A + B \\ \frac{dN_1(\vec{r}, t)}{dt} &= - \frac{1}{\hbar\omega_{12}} \vec{E}(\vec{r}, t) \frac{dP_{12}(\vec{r}, t)}{dt} + \frac{N_2(\vec{r}, t)}{\tau_{21}} + C + D \end{aligned} \quad (2.106)$$

Le signe du terme $\frac{1}{\hbar\omega_{12}} \vec{E} \frac{dP_{12}}{dt}$ indique le processus : s'il est positif il y a absorption ($1 \rightarrow 2$) alors que s'il est négatif il y a émission induite ($2 \rightarrow 1$).

L'évolution des niveaux 1 et 2 est déterminée par trois paramètres (ω_{12} , τ_{12} et $\Delta\omega_{12}$) présents dans les équations (2.106) et (2.104). Ces paramètres

peuvent être connus à l'aide de différentes expériences. La photoluminescence (PL) permet de trouver ω_{12} , qui correspond à l'énergie du pic sur un spectre de PL. La figure 2.19 présente de façon très schématique un spectre de PL. La pulsation ω_{12} correspond au sommet du pic de PL. τ_{12} est une grandeur mesurable grâce une expérience de photoluminescence résolue dans le temps. La figure 2.20 présente de manière schématique le temps de décroissance du niveau 2. En ajustant la courbe par une loi de décroissance exponentielle il est possible de trouver le temps de vie τ_{12} . Enfin nous déterminons $\Delta\omega_{12}$ par la mesure de la section efficace σ qui peut être connue par une expérience de spectrophotométrie. Le lien entre $\Delta\omega_{12}$ et σ peut être déterminé analytiquement en considérant que le champ électrique \vec{E} oscille en régime harmonique à une pulsation ω :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r})e^{i\omega t} \quad (2.107)$$

Dans ce cas la polarisation oscille à la fréquence ω tel que :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}_0(\vec{r})e^{i\omega t} \quad (2.108)$$

Sur les temps caractéristiques de \vec{P} et \vec{E} , de l'ordre de 10^{-15} s, nous pouvons considérer que N_1 et N_2 sont pratiquement constants. D'après l'équation 2.104 nous pouvons donc écrire que :

$$\vec{P} = \frac{\kappa_{12}(N_1 - N_2)}{(\omega_{12}^2 - \omega^2) + i\omega_{12}\Delta\omega_{12}} \vec{E} \quad (2.109)$$

Pour rappel la relation entre la polarisation \vec{P} et le champ électrique \vec{E} s'écrit $\vec{P} = \varepsilon_0(\varepsilon_r(\omega) - 1)\vec{E}$ et permet d'exprimer la permittivité relative ε_r [112] :

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 + \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\kappa_{12}(N_1 - N_2)}{(\omega_{12}^2 - \omega^2) + i\omega\Delta\omega_{12}} \quad (2.110)$$

Pour un indice optique complexe tel que $\tilde{n} = n - ik$, la relation entre la permittivité relative et cet indice complexe ($\varepsilon_r = \tilde{n}^2 = n^2 - k^2 - 2ink$) permet d'arriver au système d'équations suivant en isolant les parties réelles

des parties imaginaires :

$$\begin{cases} n^2 - k^2 = 1 + \frac{\kappa_{12} (N_1 - N_2) (\omega_{12}^2 - \omega^2)}{(\omega_{12}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Delta\omega_{12}^2} \\ 2nk = -\frac{\kappa_{12} (N_1 - N_2) \omega \Delta\omega_{12}}{(\omega_{12}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Delta\omega_{12}^2} \end{cases} \quad (2.111)$$

En se plaçant à la résonance, c'est à dire que le champ électrique oscille à la pulsation propre ω_{12} de la polarisation, nous pouvons exprimer la partie imaginaire k de l'indice :

$$k = \frac{\kappa_{12} (N_1 - N_2)}{2\varepsilon_0 \omega_{12} \Delta\omega_{12}} \quad (2.112)$$

Le coefficient d'atténuation α est relié à la partie imaginaire de l'indice k par la relation :

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda_{12}} \quad (2.113)$$

En remplaçant k il vient :

$$\alpha = \frac{\kappa_{12} (N_1 - N_2)}{\varepsilon_0 c \Delta\omega_{12}} \quad (2.114)$$

Les pertes α_{12} sont reliées à la section efficace σ_{12} par la relation $\alpha_{12} = \sigma_{12} (N_1 - N_2)$, ce qui permet de faire le lien la section efficace σ_{12} et la largeur de raie $\Delta\omega_{12}$:

$$\sigma_{12} = \frac{\kappa_{12}}{\varepsilon_0 c} \frac{1}{\Delta\omega_{12}} \quad (2.115)$$

L'exemple d'un deux niveau a permis d'introduire les différentes équations : les équations décrivant l'évolution temporelle de la polarisation et celles décrivant l'évolution temporelle de la population. Le modèle choisi suppose que la section efficace d'absorption (σ_{abs}) et la section efficace d'émission (σ_{em}) sont égales et dépendent, notamment, de la largeur de raie $\Delta\omega$.

2.7 Bilan

Ce chapitre a permis de présenter l'algorithme de Yee qui est à la base de la méthode FDTD, ainsi que toutes les spécificités nécessaires à la simulation d'un problème physique : les conditions aux limites absorbantes, la création d'une source de champ électromagnétique, la détermination de l'amplitude du champ électromagnétique en fonction de la fréquence et enfin la modélisation de milieux dispersifs et de milieux à gain. Le développement du code de calcul a fait partie intégrante du travail de thèse et l'ensemble a été développé au laboratoire CIMAP. Ce code est à la base des modélisations effectuées dans les prochains chapitres 3 et 4.

Chapitre 3

Milieux à gain à base de nanograins de silicium et d'ions de terres rares

Sommaire

3.1	Description du guide d'onde	91
3.1.1	Présentation générale	91
3.1.2	Les nanograins de silicium	91
3.1.3	Les ions erbium	94
3.1.4	Les ions néodyme	95
3.1.5	Évaluation du temps de calcul	97
3.2	Un nouvel algorithme de calcul	98
3.2.1	Schéma général	99
3.2.2	Détermination des populations des niveaux élec- troniques	103
3.2.3	Réduction du temps de calcul	103
3.3	Résultats	106
3.3.1	Cartes de champs	106
3.3.2	Carte de populations	109
3.3.3	Gain optique	113
3.4	Bilan et perspectives	117

Le but de ce chapitre est de modéliser la propagation d'un champ électromagnétique à l'intérieur d'un guide d'onde contenant des nanograins de silicium (ng-Si) et des ions terres rares (néodyme (Nd^{3+}) ou erbium (Er^{3+})). Plus précisément nous voulons déterminer la meilleure terre rare afin d'amplifier un signal. Les conditions de guidage sont assurées par des couches d'indice optique différents. L'amplification d'un signal est réalisée lorsque l'on obtient l'inversion de population de la terre rare considérée, permettant ainsi de favoriser le processus d'émission stimulée. Un inconvénient majeur des terres rares est leur faible section efficace d'absorption qui ne permet pas de les exciter efficacement par pompage optique direct et donc de réaliser une inversion de population. Pour améliorer l'excitation il a été proposé d'utiliser des sensibilisateurs qui sont caractérisés par une section efficace d'absorption plus importante ainsi qu'une bonne probabilité de transfert d'énergie vers les ions terres rares. En parcourant la littérature, il est fait mention de plusieurs sensibilisateurs possibles tel que les ions ytterbium, les ions métalliques ou encore les nanograins de silicium [28]. Ce sont ces derniers que nous allons utiliser comme sensibilisateurs dans notre étude.

Les ions erbium sont particulièrement intéressants car ils présentent une transition à 1532 nm, ce qui coïncide avec le maximum en transmission pour les fibres optiques en silice [113]. Cependant dans le cas des ions erbium, la transition à 1532 nm s'effectue entre un niveau excité et le niveau fondamental. C'est donc un système à trois niveaux où le mécanisme de réabsorption peut limiter le gain [114]. Plus récemment, il a été proposé de doper le guide d'onde avec des ions néodyme à la place des ions erbium. En effet Nd^{3+} présente une transition à 1064 nm entre deux niveaux dont le niveau inférieur n'est pas le niveau fondamental ce qui limite le mécanisme de réabsorption [115] et peut ainsi permettre d'améliorer le gain.

La description détaillée du guide d'onde et des dopants est présentée paragraphe 3.1. L'évaluation du temps de calcul en considérant les durées de vie des terres rares nous a amené à développer un nouvel algorithme (3.2). Nous présentons ensuite les résultats obtenus ce qui amènera une comparaison du gain brut suivant la nature de la terre rare (3.3).

3.1 Description du guide d'onde

Les dimensions caractéristiques du guide ainsi que ses propriétés sont maintenant présentées (3.1.1). Nous décrirons ensuite les différents dopants : les nanograins de silicium (3.1.2), les ions erbium (3.1.3) et les ions néodyme (3.1.4). Enfin, en considérant les durées de vie des dopants ainsi que le pas de temps imposé par la méthode ADE-FDTD nous proposons une évaluation du temps de calcul (3.1.5).

3.1.1 Présentation générale

Un schéma général du guide est présenté figure 3.1. Nous souhaitons propager une onde suivant l'axe z . Pour cela le guide d'onde est composé de trois couches : une couche inférieure constituée de silice pure, une couche active d'une épaisseur de $2\ \mu\text{m}$ constituée de silice enrichie en silicium contenant des nanograins de silicium (*silicon rich silicon oxide*, *SRSO* en anglais) et d'ions terres rares pouvant être des ions erbium (Er^{3+}) ou des ions néodyme (Nd^{3+}) et enfin un ruban de silice pure au dessus de la couche active.

Dans les guides d'ondes fabriqués expérimentalement la couche inférieure a une épaisseur typique de 5 à $8\ \mu\text{m}$ [116] afin de permettre une bonne isolation optique et d'éviter les fuites de modes dans le substrat. Cependant pour limiter l'espace mémoire occupé nous réduisons l'épaisseur de cette couche à $3,5\ \mu\text{m}$ dans les calculs, ce qui est un compromis entre l'espace mémoire occupé et une couche d'épaisseur plus importante qui assurerait un meilleur confinement optique. La couche active a un indice optique de 1,52 qui est supérieur aux couches de silice pure (1,448), dans le but d'assurer les conditions de guidage. Le rôle du ruban est d'assurer dans la zone qu'il recouvre un confinement transverse (c'est-à-dire dans le plan xy) du champ électromagnétique.

3.1.2 Les nanograins de silicium

Les niveaux d'énergie des nanograins de silicium sont modélisés par un système à deux niveaux (figures 3.2 et 3.3), où les niveaux fondamentaux Si_0

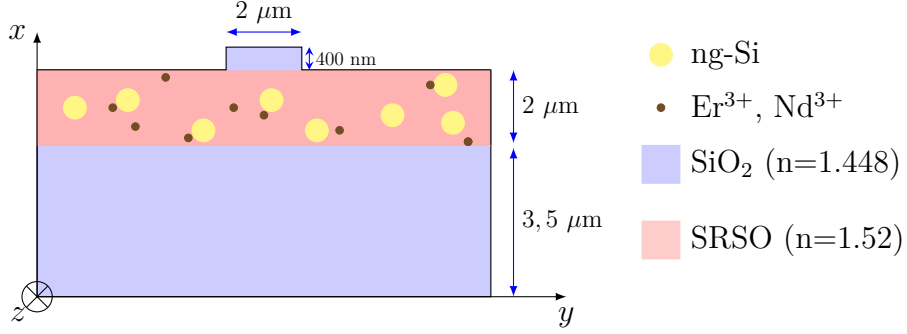


FIGURE 3.1 – Vue en coupe transversale du guide d'onde possédant un substrat de SiO_2 , une couche active de SiO_2 avec nanograins de silicium et ions terres rares et un ruban de SiO_2

et excité Si_1 sont décrits par les équations (3.2) et (3.1). Expérimentalement les nanograins de silicium peuvent être excités par un laser émettant à une longueur d'onde de 488 nm afin d'exciter les électrons de la bande de valence vers la bande de conduction [67]. Après plusieurs désexcitations de l'électron dans la bande de conduction, celui-ci peut soit se recombiner radiativement avec le trou ou non radiativement en donnant lieu à un transfert d'énergie vers un ion de terre rare dans son voisinage. Les ng-Si devraient donc être décrits par un système multi-niveaux formant des bandes d'énergie ou plus simplement par un système à 3 niveaux. Cependant les désexcitations intrabandes étant très rapides par rapport au temps de recombinaison électron-trou, l'erreur commise en décrivant les ng-Si par 2 niveaux d'énergie est acceptable [63]. La faible probabilité de générer plusieurs excitons dans un nanograin de silicium [117], nous permet de considérer l'excitation d'un seul exciton par nanograin. Le temps de vie du niveau excité τ_{Si_10} , prenant en compte les désexcitations radiative et non radiative, a été choisi égal à 50 μs , conformément aux références trouvées dans la littérature [46]. Le transfert d'énergie entre les nanograins de silicium et les ions terres rares peut être décrit par un coefficient de transfert phénoménologique K . La littérature nous renseigne sur le transfert d'énergie entre ng-Si et Er^{3+} [63, 64] mais à notre connaissance aucune étude, évaluant le coefficient K , n'a été faite sur le transfert d'énergie des ng-Si vers Nd^{3+} . L'évaluation de K nécessite

$j \rightarrow i$	τ_{ji} (s)	$\omega_{ij}(10^{15} \text{ rad.s}^{-1})$
$1 \rightarrow 0$	50.10^{-6}	3,862

TABLE 3.1 – Temps de vie τ_{ji} et pulsation ω_{ij} , correspondant à 488 nm, utilisés pour décrire les niveaux des nanograins de silicium

d'établir un système d'équations comprenant les niveaux de population des nanograins de silicium et des ions de terres rares. Il faut ensuite ajuster les paramètres inconnus, dont K , pour reproduire les mesures expérimentales de la luminescence de chaque transition par le système d'équations [63]. Nous choisissons donc de prendre le coefficient de transfert évalué par Pacifici *et al* [63], $K = 10^{-14} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$, pour les deux terres rares. De plus, afin de comparer les résultats, la concentration en ng-Si est identique pour les deux terres rares et égale à 10^{19} cm^{-3} , ce qui est proche de la concentration maximale de $2,6.10^{19} \text{ cm}^{-3}$ atteinte expérimentalement dans l'équipe NIMPH du laboratoire CIMAP [67]. Les paramètres des nanograins de silicium sont reportés dans le tableau 3.1.

Une valeur réaliste de la section efficace d'absorption et d'émission du silicium à 488 nm est 10^{-16} cm^2 [46]. La détermination de la largeur de raie $\Delta\omega$ correspondante sera présentée dans le paragraphe 3.2.3.

Les équations ci-dessous décrivent l'évolution dans le temps t de la population des niveaux N_{Si_1} et N_{Si_0} (voir chapitre 2.6.2). De façon générale $\frac{dN}{dt}$ est la variation de population dN pendant un temps dt , $\hbar\omega$ est l'énergie d'un photon de pulsation ω , τ_{ji} la durée de vie du niveau j , $\frac{1}{\hbar\omega} \vec{E} \frac{d\vec{P}}{dt}$ est la densité volumique de photons par unité de temps [118] et $KN_{Si}N_{TR}$ le transfert d'énergie entre les nanograins de silicium et les ions de terres rares :

$$\frac{dN_{Si_1}(t)}{dt} = + \frac{1}{\hbar\omega_{Si_{10}}} \vec{E}(t) \frac{d\vec{P}_{Si_{10}}(t)}{dt} - \frac{N_{Si_1}(t)}{\tau_{Si_{10}}|_{nr}} - KN_{Si_1}(t) N_0(t) \quad (3.1)$$

$$\frac{dN_{Si_0}(t)}{dt} = - \frac{1}{\hbar\omega_{Si_{10}}} \vec{E}(t) \frac{d\vec{P}_{Si_{10}}(t)}{dt} + \frac{N_{Si_1}(t)}{\tau_{Si_{10}}|_{nr}} + KN_{Si_1}(t) N_0(t) \quad (3.2)$$

3.1.3 Les ions erbium

Les niveaux d'énergie des ions erbium sont modélisés par un système à 4 niveaux [63] (figure 3.2) : 0 ($^4I_{15/2}$), 1 ($^4I_{13/2}$), 2 ($^4I_{11/2}$) et 3 ($^4I_{9/2}$). Nous considérons qu'il y a deux transitions non radiatives ($3 \rightarrow 2$ et $2 \rightarrow 1$) et une transition radiative ($1 \rightarrow 0$) à 1532 nm que l'on cherche à propager et amplifier (signal). De plus il y a un processus d'up-conversion à partir du niveau 1 vers les niveaux 2 et 3 que nous modélisons en introduisant un coefficient C_{up} . Nous fixons $C_{up} = 5.10^{-23} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ ce qui correspond à une valeur moyenne trouvée dans la littérature [63, 64]. Conformément à des données expérimentales [63, 119] nous fixons la concentration en ions erbium à 10^{20} cm^{-3} [63, 119]. Les équations (3.3) à (3.6) décrivent l'évolution temporelle des niveaux de Er^{3+} . Les temps de vie τ_{ji} des différents niveaux de Er^{3+} ainsi que la pulsation ω_{01} de la transition radiative sont reportés dans le tableau 3.2.

$j \rightarrow i$	τ_{ji} (s)	$\omega_{ij}(10^{15} \text{ rad.s}^{-1})$
$3 \rightarrow 2$	$0,1.10^{-6}$	1,23
$2 \rightarrow 1$	$2,4.10^{-6}$	
$2 \rightarrow 0$	710.10^{-6}	
$1 \rightarrow 0$	$8,5.10^{-3}$	

TABLE 3.2 – Temps de vie τ_{ji} des différents niveaux de Er^{3+} , ainsi que la pulsation ω_{01} de la transition radiative.

La littérature rapporte une section efficace d'émission de la transition $1 \rightarrow 0$ de 6.10^{-21} cm^2 [63, 64]. La largeur de raie correspondante sera présentée dans le paragraphe 3.2.3.

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = -\frac{N_3(t)}{\tau_{32}|_{nr}} + KN_{Si_1}(t)N_0(t) + C_{up}N_1^2 \quad (3.3)$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = +\frac{N_3(t)}{\tau_{32}|_{nr}} - \frac{N_2(t)}{\tau_{21}|_{nr}} - \frac{N_2(t)}{\tau_{20}|_{nr}} \quad (3.4)$$

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = +\frac{1}{\hbar\omega_{10}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{10}(t)}{dt} + \frac{N_2(t)}{\tau_{21}|_{nr}} - \frac{N_1(t)}{\tau_{10}|_{nr}} - 2C_{up}N_1^2 \quad (3.5)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_0(t)}{dt} = & -\frac{1}{\hbar\omega_{10}} \vec{E}(t) \frac{d\vec{P}_{10}(t)}{dt} \\ & + \frac{N_2(t)}{\tau_{20}|_{nr}} + \frac{N_1(t)}{\tau_{10}|_{nr}} - KN_{Si_1}(t)N_0(t) + C_{up}N_1^2 \end{aligned} \quad (3.6)$$

3.1.4 Les ions néodyme

Les niveaux d'énergie des ions néodyme sont modélisés par un système à 5 niveaux [120] (figure 3.3) : 0 ($^4I_{9/2}$), 1 ($^4I_{11/2}$), 2 ($^4I_{13/2}$), 3 ($^4F_{3/2}$) et 4 ($^4F_{5/2} + ^2H_{9/2}$). Nous considérons qu'il y a trois transitions non radiatives ($4 \rightarrow 3$, $2 \rightarrow 1$ et $1 \rightarrow 0$) et trois transitions radiatives ($3 \rightarrow 2$ à 1340 nm, $3 \rightarrow 1$ à 1064 nm et $3 \rightarrow 0$ à 945 nm). La transition à 1064 nm, qui présente la probabilité la plus grande (donc le temps de vie le plus faible), sera la longueur d'onde du signal considéré dans notre étude. Conformément à des valeurs expérimentales et afin d'effectuer une comparaison du gain optique pouvant être atteint la concentration en ions néodyme est identique à celle de l'erbium (10^{20} cm^{-3}). La littérature [121, 122] rapporte un processus d'up-conversion du niveau $^4F_{3/2}$ vers les niveaux $^4I_{11/2}$ et $^2G_{9/2}$ (qui n'est pas représenté sur la figure 3.3) décrit de façon phénoménologique par un paramètre C_{up} variant de $C_{up} = 1.10^{-17} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à $C_{up} = 5.10^{-17} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Le terme $C_{up}N_3$ a la dimension de l'inverse d'un temps. On peut ainsi définir un temps caractéristique d'up-conversion par $\tau_{up} = \frac{1}{C_{up}N_3}$, où N_3 est la population du niveau 3 à un instant t . Dans le cas limite où $N_3 = N_{tot} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et $C_{up} = 1.10^{-17} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, le temps caractéristique d'up-conversion vaut $\tau_{up} = 1 \text{ ms}$ ce qui est important par rapport aux autres niveaux. Ceci nous permet de négliger le processus d'up-conversion pour le néodyme. Les équations (3.7) à (3.11) décrivent l'évolution temporelle des niveaux de Nd^{3+} . Les temps de vie τ_{ji} des différents niveaux de Nd^{3+} ainsi que les pulsations ω_{ij} des transitions radiatives [123–126] sont reportés dans le tableau 3.3.

La littérature rapporte une section efficace d'émission de la transition 3 vers les niveaux 0, 1 et 2 de 10^{-19} cm^2 [111]. Les largeurs de raies correspondante seront présentées dans le paragraphe 3.2.3.

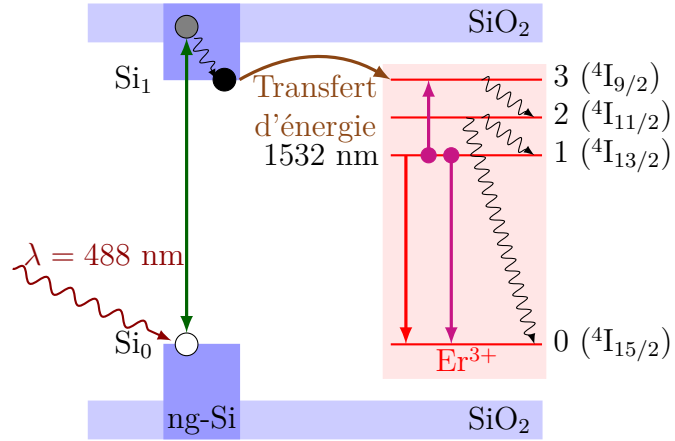


FIGURE 3.2 – Schéma des niveaux d'énergie des ng-Si et de Er^{3+} et mécanisme d'excitation de Er^{3+}

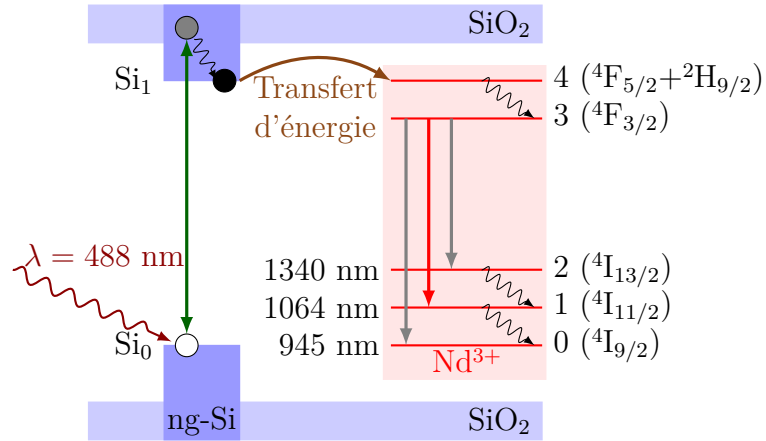


FIGURE 3.3 – Schéma des niveaux d'énergie des ng-Si et de Nd^{3+} et mécanisme d'excitation de Nd^{3+}

$j \rightarrow i$	τ_{ji} (s)	$\omega_{ij}(10^{15} \text{ rad.s}^{-1})$
$4 \rightarrow 3$	230.10^{-12}	
$3 \rightarrow 2$	1000.10^{-6}	1,34
$3 \rightarrow 1$	200.10^{-6}	1,77
$3 \rightarrow 0$	250.10^{-6}	1,99
$2 \rightarrow 1$	970.10^{-12}	
$1 \rightarrow 0$	510.10^{-12}	

TABLE 3.3 – Temps de vie τ_{ji} des différents niveaux de Nd^{3+} , ainsi que les pulsation ω_{ij} des transitions radiatives [123–126].

$$\frac{dN_4(t)}{dt} = -\frac{N_4(t)}{\tau_{43}|_{nr}} + K N_{Si_1}(t) N_0(t) \quad (3.7)$$

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = +\frac{1}{\hbar\omega_{30}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{30}(t)}{dt} + \frac{1}{\hbar\omega_{31}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{31}(t)}{dt} + \frac{1}{\hbar\omega_{32}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{32}(t)}{dt} \quad (3.8)$$

$$+ \frac{N_4(t)}{\tau_{43}|_{nr}} - \frac{N_3(t)}{\tau_{30}|_{nr}} - \frac{N_3(t)}{\tau_{31}|_{nr}} - \frac{N_3(t)}{\tau_{32}|_{nr}}$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = -\frac{1}{\hbar\omega_{32}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{32}(t)}{dt} + \frac{N_3(t)}{\tau_{32}|_{nr}} - \frac{N_2(t)}{\tau_{21}|_{nr}} \quad (3.9)$$

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\frac{1}{\hbar\omega_{31}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{31}(t)}{dt} + \frac{N_3(t)}{\tau_{31}|_{nr}} - \frac{N_1(t)}{\tau_{10}|_{nr}} + \frac{N_2(t)}{\tau_{21}|_{nr}} \quad (3.10)$$

$$\frac{dN_0(t)}{dt} = -\frac{1}{\hbar\omega_{30}}\vec{E}(t)\frac{d\vec{P}_{30}(t)}{dt} + \frac{N_3(t)}{\tau_{30}|_{nr}} + \frac{N_1(t)}{\tau_{10}|_{nr}} - K N_{Si_1}(t) N_0(t) \quad (3.11)$$

3.1.5 Évaluation du temps de calcul : Vers un nouvel algorithme

Évaluons par la méthode ADE-FDTD classique le temps de calcul nécessaire pour arriver à un régime stationnaire des populations. Pour les deux guides d'ondes étudiés, ng-Si:Er³⁺ et ng-Si:Nd³⁺, les temps de vie maximum des populations sont respectivement de $8,5.10^{-3}$ s et 1.10^{-3} s. Dans les deux cas, pour arriver à un état stationnaire des populations nous devons donc connaître l'état des populations à des temps de l'ordre de deux ou trois fois

le temps de vie maximal des populations, donc au delà de la milliseconde. Le pas de temps Δt est, comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, imposé par la formule suivante (dans le cas où $\Delta_x = \Delta_y = \Delta_z = \Delta$) :

$$\Delta t = S \frac{\Delta}{\sqrt{3}c} \quad (3.12)$$

Le pas spatial Δ doit obéir à la relation suivante, où λ_{\min} est la plus petite longueur d'onde présente dans le système :

$$\Delta < \frac{\lambda_{\min}}{10} \quad (3.13)$$

Dans notre système la longueur d'onde la plus petite (donc la pulsation ω la plus grande) est celle utilisée pour le pompage des nanograins de silicium ($\lambda_{\min} = 488$ nm). En prenant comme exemple un nombre de courant $S = 0,5$, ce qui est une valeur raisonnable, cela amène à un pas de temps $\Delta t = 4,7 \cdot 10^{-17}$ s. Pour atteindre 1 ms, le nombre de pas de temps est donc d'environ de $2 \cdot 10^{13}$. Afin d'évaluer le temps de calcul nous lançons un calcul de $10^5 \Delta t$ en modélisant le guide d'onde présenté figure 3.1. Cette estimation est justifiée car le nombre d'opérations pour passer de t à $t + \Delta t$ est constant sur toute la durée du calcul ce qui induit une relation linéaire entre le temps de calcul et le nombre de pas de temps. Nous choisissons pour cette estimation des grandeurs typiques utilisées par la suite : un pas d'espace de 50 nm et une boîte de calcul ayant les dimensions suivantes : $8 \mu\text{m} \times 16 \mu\text{m} \times 8 \mu\text{m}$, cela amène à $8,2 \cdot 10^6$ cellules. Sur un nœud de calcul du CRIHAN (bi-processeur 4-cœurs Intel Nehalem EP @ 2,8 GHz) il a fallu 24h pour réaliser les $10^5 \Delta t$. Pour réaliser les $2 \cdot 10^{13}$ itérations afin d'atteindre 1 ms, il faudrait donc $5 \cdot 10^5$ années. Nous proposons donc un nouvel algorithme qui permet de réduire ce temps de calcul.

3.2 Un nouvel algorithme de calcul

Nous avons développé un nouvel algorithme de calcul basé sur la méthode ADE-FDTD qui a fait l'objet d'une publication [127]. Nous commencerons

par présenter le schéma général de l'algorithme (3.2.1) avant de discuter de la détermination des niveaux de populations à l'état stationnaire (3.2.2).

3.2.1 Schéma général

Le champ électromagnétique \vec{E}, \vec{H} et les polarisations \vec{P}_{ij} , dans le domaine de longueur d'onde étudié entre 400 nm et 2000 nm, ont des temps caractéristiques de l'ordre de 10^{-15} s alors que les différentes populations N_i ont des temps caractéristiques pouvant aller jusqu'à quelques ms. Nous proposons de découpler le calcul de \vec{E}, \vec{H} et \vec{P}_{ij} du calcul des populations N_i . En observant les équations de populations (equations (3.1) à (3.11)) nous constatons que le champ électromagnétique et la polarisation apparaissent uniquement dans le terme suivant : $I_{ij}(t) = \frac{1}{\hbar\omega_{ij}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{ij}}{dt}$ qui est la densité volumique de photons par unité de temps ($\text{m}^{-3}.\text{s}^{-1}$). C'est une fonction qui évolue rapidement mais avec une valeur moyenne temporelle qui évolue lentement. L'évolution des populations est seulement gouvernée par la valeur moyenne de la densité volumique de photons car c'est un mécanisme lent par rapport à la période de $I_{ij}(t)$.

Sur ces constatations nous proposons un nouvel algorithme (figure 3.4). Cet algorithme se décompose en 2 parties :

- Dans une 1^{re} partie le champ électromagnétique \vec{E} et \vec{H} ainsi que la polarisation des différentes transitions \vec{P}_{ij} sont calculés en utilisant les équations (2.10a) à (2.10f) et (2.105) présentées dans le chapitre 2. Durant cette partie nous supposons que les populations N_i ne varient pas dans le temps ce qui implique que ΔN_{ij} soit constant. Les populations de nanograins de silicium et de terres rares sont prises dans l'état fondamental au lancement du calcul. Nous calculons la valeur moyenne courante $\langle I_{ij} \rangle(t)$ qui suit l'évolution de la partie lentement variable. Nous arrêtons le calcul lorsque $\langle I_{ij} \rangle(t)$ a atteint une valeur stationnaire. La moyenne courante est calculée par la formule suivante :

$$\langle I_{ij} \rangle(t) = \frac{1}{t} \sum_{t'=0}^t I_{ij}(t') \Delta t' \quad (3.14)$$

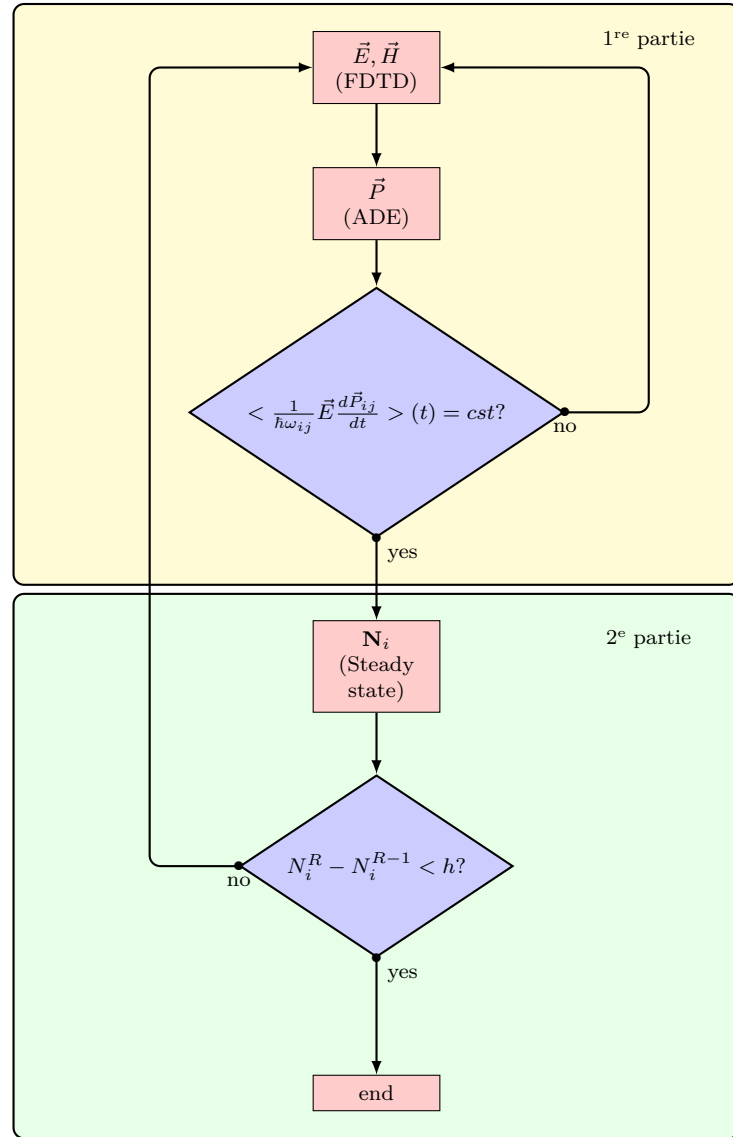


FIGURE 3.4 – Schéma de l’algorithme. Dans la 1^{re} partie, le champ électromagnétique et les polarisations sont calculés en considérant les populations indépendantes du temps. Dans la 2^e les populations sont calculées en utilisant les résultats de la 1^{re} partie.

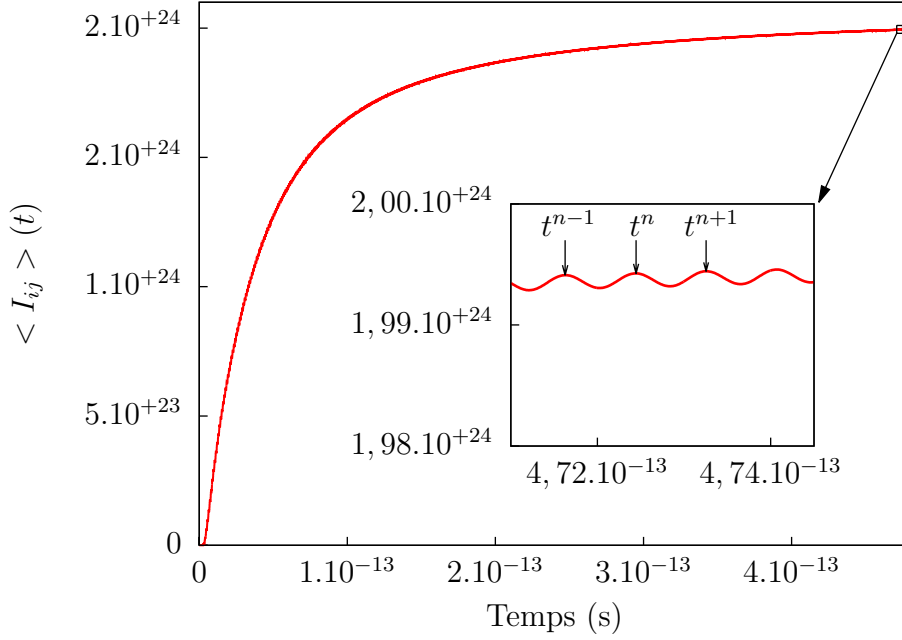


FIGURE 3.5 – Évolution temporelle de $\langle I_{ij} \rangle (t)$ dans la 1^{re} partie de l'algorithme dans laquelle les populations ne dépendent pas du temps et $\Delta N_{ij} > 0$.

Les variations rapides de I_{ij} induisent une oscillation de $\langle I_{ij} \rangle (t)$. Ces oscillations sont représentées sur la figure 3.5. Pour relever la valeur de $\langle I_{ij} \rangle (t)$ à l'état stationnaire nous introduisons le critère suivant, où les temps t^{n-1} , t^n et t^{n+1} correspondent à trois maxima successifs (figure 3.5) :

$$\frac{\langle I_{ij} \rangle (t^{n+1}) - \langle I_{ij} \rangle (t^{n-1})}{\langle I_{ij} \rangle (t^n)} < \eta \quad (3.15)$$

où η est une valeur seuil que l'on définit. Nous l'avons fixée à $\eta = 2,5 \cdot 10^{-8}$ car cette valeur permet d'avoir une moyenne courante stationnaire satisfaisante avec un temps de calcul acceptable de l'ordre de 2 jours sur le calculateur du CRIHAN. Lorsque l'équation (3.15) est vérifiée, nous considérons que $\langle I_{ij} \rangle (t)$ a atteint l'état stationnaire et on le note $\langle I_{ij} \rangle^{\text{stat}}$.

— Dans la 2^e partie les niveaux de populations N_i sont calculés en rem-

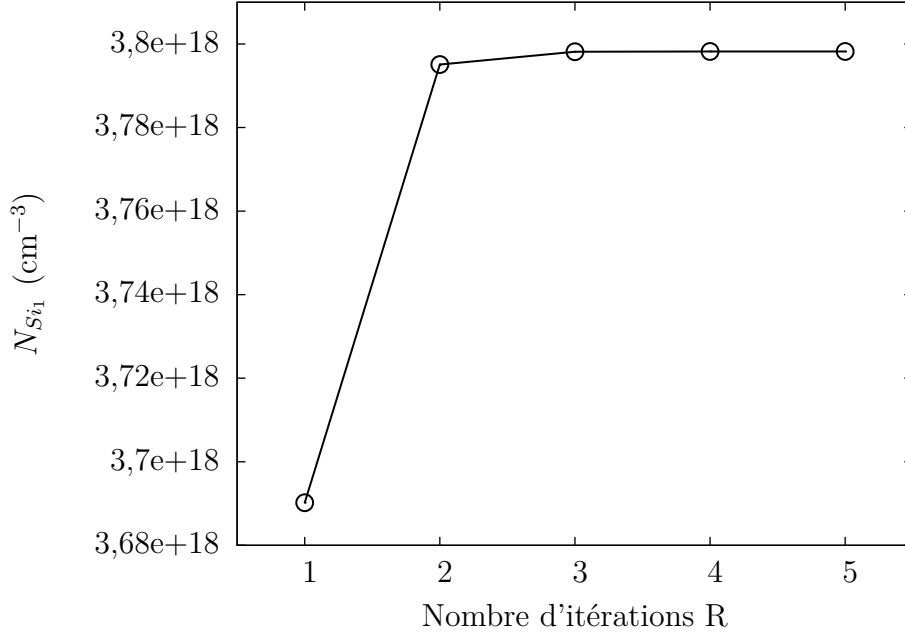


FIGURE 3.6 – Évolution du niveau excité N_{Si_1} des nanograins de silicium en fonction du nombre de boucles globales R

plaçant tous les termes de densité instantanée de photons du temps, $\frac{1}{\hbar\omega_{ij}}\vec{E}(t)\frac{dP_{ij}}{dt}$, par la densité volumique de photon moyennée dans le temps $\langle I_{ij} \rangle^{\text{stat}} = \langle \frac{1}{\hbar\omega_{ij}}\vec{E}(t)\frac{dP_{ij}}{dt} \rangle^{\text{stat}}$ trouvés à la 1^{ère} partie. Nous déterminons ensuite les niveaux de populations à l'état stationnaire, c'est-à-dire $\frac{dN_i}{dt} = 0$. Les différentes valeurs N_i sont alors reportées dans la 1^{ère} partie et ce jusqu'à que la différence de populations entre deux boucles globales consécutives $N_i^R - N_i^{R-1}$ soit inférieure à une valeur h définie où R est la boucle globale regroupant les étapes de la 1^{re} partie et de la 2^e partie de l'algorithme. La figure 3.6 présente l'évolution du niveau excité du silicium N_{Si_1} en fonction du nombre de boucles globales R . Nous avons choisi d'arrêter le calcul après 5 boucles globales R car le niveau N_{Si_1} a atteint une valeur stationnaire satisfaisante. Lorsqu'il y a plusieurs niveaux N_i dans le système nous arrêtons l'algorithme lorsque tous les niveaux N_i ont atteint une valeur stationnaire.

3.2.2 Détermination des populations des niveaux électroniques

Nous détaillons la méthode employée pour le calcul des populations à l'état stationnaire de la 2^e partie. Toujours dans le but de réduire le temps de calcul, nous avons résolu analytiquement les équations de populations (3.1), (3.2) et (3.7) à (3.11) dans le cas du système ng-Si:Nd³⁺. Pour cela nous avons cherché les solutions stationnaires du système d'équations de populations et abouti à des solutions analytiques des différents niveaux. La méthode de résolution analytique est explicitée dans l'annexe B.

Dans le cas du système ng-Si:Er³⁺ le terme d'up-conversion $C_{up}N_1^2$ complique la résolution du système et il ne nous a pas été possible d'obtenir une forme analytique simple. Par conséquent nous utilisons alors un calcul par différences finies afin de trouver l'état stationnaire des populations. En effet nous ne sommes plus contraint d'utiliser le pas de temps imposé pour le calcul du champ électromagnétique par la méthode FDTD. Nous choisissons alors un pas de temps de 0.01 μ s qui est inférieur à 10 fois la durée de vie la plus courte (0.1 μ s qui correspond à la transition $3 \rightarrow 2$ de Er³⁺). Par rapport à une solution analytique le temps de calcul n'augmente pas de manière significative.

3.2.3 Réduction du temps de calcul : propriété de superposition du vecteur polarisation

Nous détaillons maintenant une seconde technique qui nous a permis de réduire davantage le temps de calcul. Comme nous l'avons détaillé dans le paragraphe 3.2.1, la 1^{re} partie de l'algorithme se poursuit jusqu'à ce que $\langle I_{ij} \rangle(t)$ atteigne une valeur stationnaire. Ce temps est directement lié au temps d'établissement de la polarisation P_{ij} dans un régime permanent. Pour rappel l'équation de la polarisation d'une transition ij est :

$$\frac{d^2 \vec{P}_{ij}}{dt^2} + \Delta\omega_{ij} \frac{d\vec{P}_{ij}}{dt} + \omega_{ij}^2 \vec{P}_{ij} = \kappa_{ij} \Delta N_{ij} \vec{E} \quad (3.16)$$

C'est l'équation d'un oscillateur harmonique amorti en régime forcé. En se plaçant dans le cas du régime pseudo-périodique (choix qui est justifié car nous sommes dans le cas où $\frac{\omega_{ij}}{\Delta\omega_{ij}} > \frac{1}{2}$), le temps pour atteindre un régime stationnaire est inversement proportionnel à $\Delta\omega_{ij}$. Pour diminuer le temps de calcul, il faut donc que $\Delta\omega_{ij}$ soit élevé. Le lien entre la section efficace σ (d'absorption ou de diffusion car nous considérons dans notre modèle qu'elles sont égales) et $\Delta\omega_{ij}$ a été établi au chapitre 2. Pour rappel :

$$\sigma(\omega_{ij}) = \frac{\kappa_{ij}}{\epsilon_0 c} \frac{1}{\Delta\omega_{ij}} \quad (3.17)$$

Les valeurs de sections efficaces σ trouvées dans la littérature imposent donc le choix de $\Delta\omega_{ij}$. Des valeurs de σ élevées conduisent à un faible $\Delta\omega_{ij}$ ce qui augmente le temps de calcul. Pour avoir un degré de liberté supplémentaire, nous utilisons la propriété de superposition des polarisations. Une transition ij pourra alors être décrite avec N_p polarisations ayant la même pulsation de résonance ω_{ij} et le même coefficient de frottements $\Delta\omega_{ij}$. Dans ce cas le lien entre la section efficace σ et $\Delta\omega_{ij}$ est déterminé par :

$$\sigma(\omega_{ij}) = \frac{\kappa_{ij}}{\epsilon_0 c} \frac{N_p}{\Delta\omega_{ij}} \quad (3.18)$$

La figure 3.7 présente la section efficace σ en fonction de la pulsation ω pour une transition avec $\omega_{ij} = 3,8 \cdot 10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ pour deux cas : $\Delta\omega_{ij} = 10^{11} \text{ rad.s}^{-1}$ avec une polarisation ($N_p = 1$) et $\Delta\omega_{ij} = 10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$ avec 1000 polarisations ($N_p = 1000$). La valeur de la section efficace est identique dans les deux cas à la résonance ($\omega = \omega_{ij}$) mais différente hors de la résonance ($\omega \neq \omega_{ij}$). Cependant les systèmes que l'on modélise ne comportent que quelques pulsations ω_{ij} dont les valeurs sont éloignées (paragraphe 3.1) ce qui permet de considérer que la section efficace est négligeable quand ω est éloigné de ω_{ij} . Par conséquent les résultats seront quasiment identiques

Nous appliquons la méthode de superposition des polarisations pour les nanograins de silicium qui présentent une section efficace élevée (10^{-16} cm^2). En prenant $N_p = 1$ cela correspond à $\Delta\omega_{Si_{10}} = 1,5 \cdot 10^{11} \text{ rad.s}^{-1}$. Pour raccourcir le temps de calcul nous imposons $\Delta\omega_{Si_{10}} = 10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$ ce qui amène

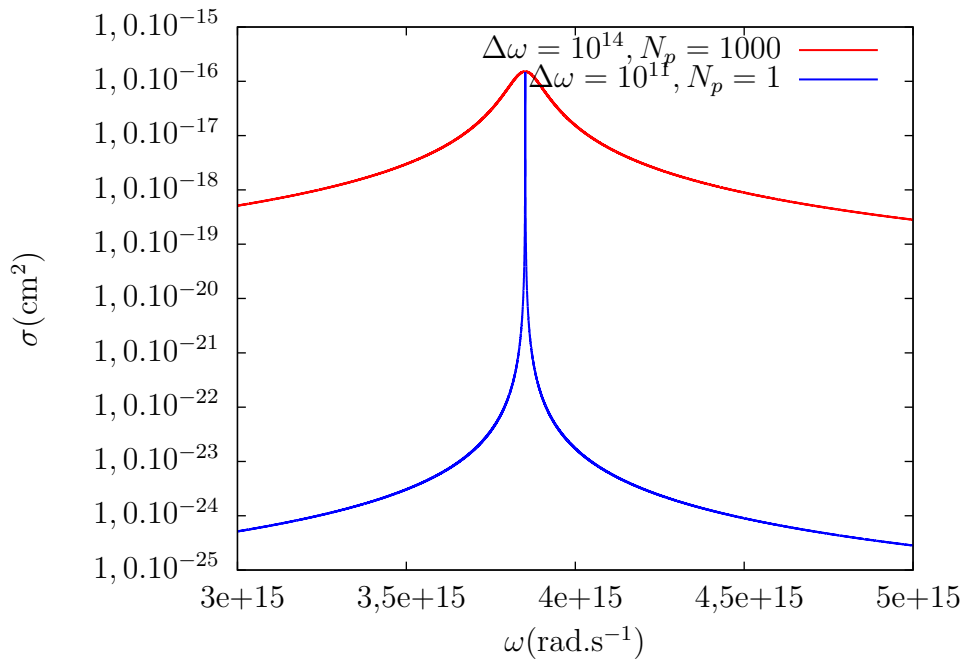


FIGURE 3.7 – Section efficace en fonction de la pulsation ω pour une transition avec $\omega_{ij} = 3,8.10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ pour deux couples de paramètres (largeur de raie $\Delta\omega$, nombre de polarisations N_p) conduisant à la même section efficace lorsque $\omega = \omega_{ij}$

Dopant	Transition $j \rightarrow i$	$\Delta\omega_{ij}$ rad.s ⁻¹	N_p
ng-Si	$1 \rightarrow 0$	10^{14}	2756
Er ³⁺	$2 \rightarrow 1$	$1,5.10^{14}$	1
Nd ³⁺	$3 \rightarrow 2$	$6,7.10^{14}$	1
	$3 \rightarrow 1$	$1,8.10^{14}$	1
	$3 \rightarrow 0$	$1,1.10^{14}$	1

TABLE 3.4 – Valeurs des différentes largeurs de raies $\Delta\omega_{ij}$ et nombre de polarisations N_p associées des transitions $j \rightarrow i$.

$N_p = 2756$. Les largeurs de raies $\Delta\omega_{ij}$ des ions néodyme et des ions erbium sont présentées dans le tableau 3.4.

3.3 Résultats

Nous exposons ici les résultats obtenus pour le guide d'onde présenté partie 3.1, co-dopé avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares (Nd³⁺ ou Er³⁺). Nous injectons un signal avec une intensité de 1 mW.mm⁻² à 1532 nm pour le guide d'onde ng-Si:Er³⁺ et à 1064 nm pour le guide d'onde ng-Si:Nd³⁺. Pour les deux guides nous injectons une onde à 488 nm servant à pomper les nanograins de silicium et dont l'intensité peut varier de 1 à 10⁴ mW.mm⁻² ce qui est atteignable expérimentalement.

3.3.1 Cartes de champs

Pour visualiser le guidage du champ électromagnétique à l'intérieur de la couche active, nous présentons les cartes du vecteur de Poynting \vec{R} (mW.mm⁻²) à différentes longueurs d'ondes. Nous représentons uniquement la composante selon z , qui est majoritaire lorsque l'onde se propage selon cet axe. La répartition spatiale des sources injectées à l'entrée du guide est déduite d'un calcul de mode de propagation grâce au solveur de mode présenté paragraphe 2.4.1. Pour les trois longueurs d'ondes à 488 nm, 1064 nm et 1532 nm nous injectons le mode fondamental TE.

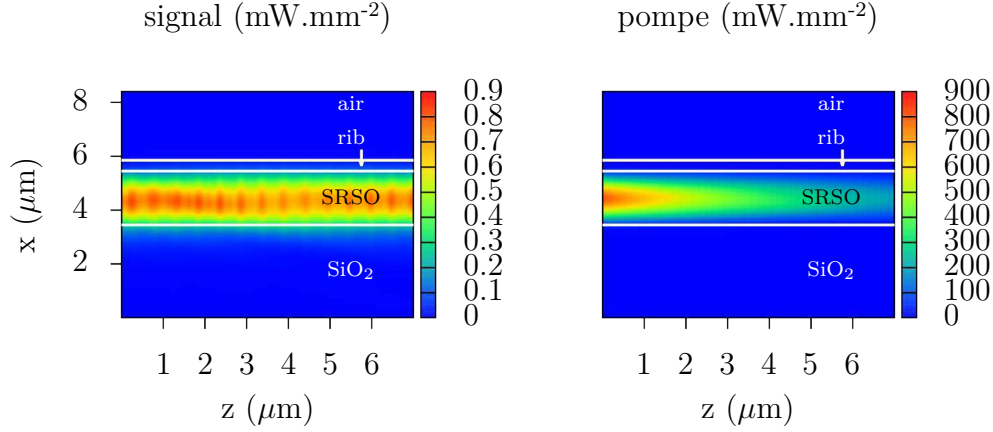


FIGURE 3.8 – Vue longitudinale de la composante R_z du vecteur de Poynting du signal ($\lambda = 1532$ nm) et de la pompe ($\lambda = 488$ nm) pour une intensité de pompe de 1000 mW.mm^{-2}

Guide d'ondes ng-Si:Er³⁺

La figure 3.8 présente une vue longitudinale (plan xz) de R_z à la longueur d'onde du signal (1532 nm) et de la pompe (488 nm) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm^{-2} . Cette grandeur est accessible grâce à une transformée de Fourier dont la technique est décrite dans le paragraphe 2.5 du chapitre 2. Nous pouvons remarquer que la pompe et le signal sont guidés dans la couche active SRSO du guide d'onde. Le signal n'est pas amplifié sur la longueur de guide modélisé ($7 \mu\text{m}$). L'intensité de la pompe diminue le long du guide d'onde, du fait de l'absorption par les nanograins de silicium. En effet nous avons réalisé des essais en modélisant le même guide d'onde mais sans les nanograins de silicium et dans ce cas l'intensité de la pompe était constante le long du guide. Nous pourrions vérifier cela en analysant les cartes de populations présentées en 3.3.2.

La figure 3.9 présente une vue transverse (plan xy) de R_z à la longueur d'onde du signal (1532 nm) et de la pompe (488 nm), à $z = 3,5 \mu\text{m}$, c'est-à-dire au milieu du guide d'onde. Nous remarquons que le champs électromagnétique s'étend au-delà de la couche active et nous introduisons le facteur de confinement, Γ qui est le rapport entre la puissance optique localisée dans la

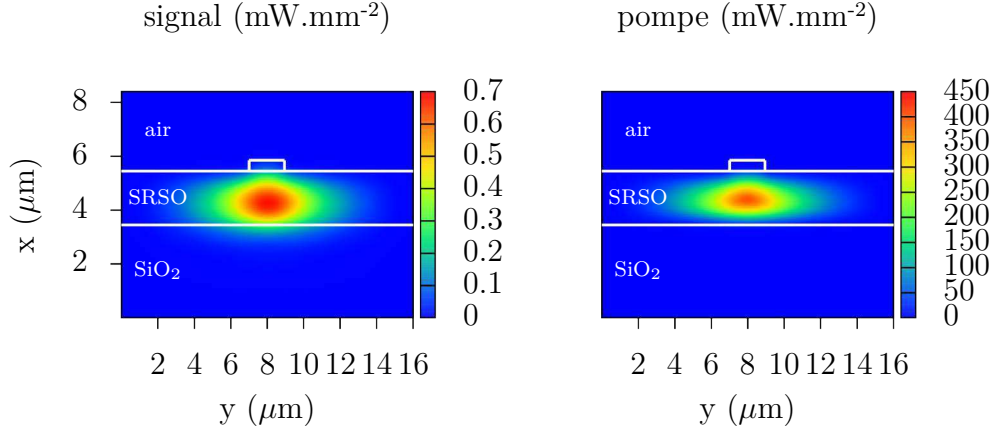


FIGURE 3.9 – Vue transversale de la composante R_z du vecteur de Poynting du signal ($\lambda = 1532$ nm) et de la pompe ($\lambda = 488$ nm) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm^{-2}

couche amplificatrice et la puissance optique dans toute la section transverse. Pour la pompe à 488 nm nous déterminons $\Gamma_{488} = 0,99$ et pour le signal à 1532 nm $\Gamma_{1532} = 0,86$ ce qui indique que la pompe, de longueur d'onde plus faible, est mieux confinée à l'intérieur de la couche active.

Guide d'ondes ng-Si:Nd³⁺

La figure 3.10 présente une vue longitudinale (plan xz) de R_z à la longueur d'onde du signal (1064 nm) et de la pompe (488 nm) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm^{-2} . Comme pour le guide d'onde ng-Si:Er³⁺, nous trouvons que l'intensité du signal reste du même ordre de grandeur le long du guide, tandis que la pompe est fortement absorbée.

Pour les deux guides d'ondes, ng-Si:Er³⁺ et ng-Si:Nd³⁺, le pompage en co-propagation avec le signal est donc limité par l'absorption des nanograins de silicium. Nous définissons la longueur de décroissance caractéristique L par la formule suivante :

$$I(x = 4,5 \text{ } \mu\text{m}, z) = I(x = 4,5 \text{ } \mu\text{m}, z = 0)e^{-\frac{z}{L}} \quad (3.19)$$

où I est l'intensité de la pompe, c'est-à-dire le module de la transfor-

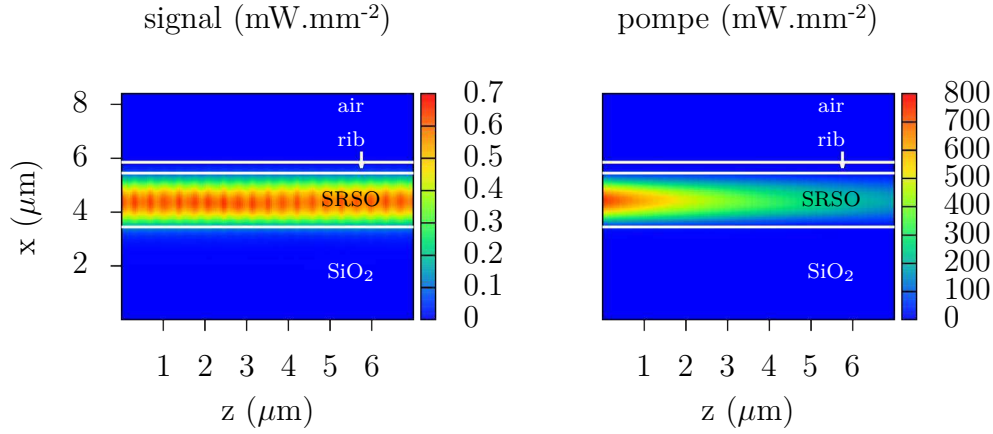


FIGURE 3.10 – Vue longitudinale de la composante R_z du vecteur de Poynting du signal ($\lambda = 1064$ nm) et de la pompe ($\lambda = 488$ nm) pour une puissance de pompe de $1000 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2}$

mée du vecteur de Poynting. Pour le guide d'onde ng-Si:Er³⁺ nous trouvons $L = 95,8 \pm 5,1$ nm et pour ng-Si:Nd³⁺ $L = 96 \pm 5,3$ nm. La longueur de décroissance est, aux incertitudes près, identique pour les deux guides d'ondes, ce qui permet de penser que l'absorption de la pompe est principalement due au nanograins de silicium et de façon négligeable à la terre rare. Avec une longueur $L \simeq 96$ nm, ce mode de pompage en co-propagation est peu avantageux dans le cas d'un guide d'onde dont la longueur est supérieure à quelques dizaines de micromètres.

3.3.2 Carte de populations

La modélisation mise en place permet de connaître la distribution spatiale de la différence de population. Pour une transition $i \rightarrow j$ nous définissons la différence de population $\frac{N_i - N_j}{N_{tot}}$, où N_{tot} est la population totale du dopant. Pour rappel la concentration des ions erbium et néodyme est égal à $N_{tot} = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et pour les nanograins de silicium $N_{tot} = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Pour chaque dopant une transition nous intéresse particulièrement :

- Pour ng-Si, la transition $1 \rightarrow 0$ à 488 nm permet de caractériser le pompage et le transfert.

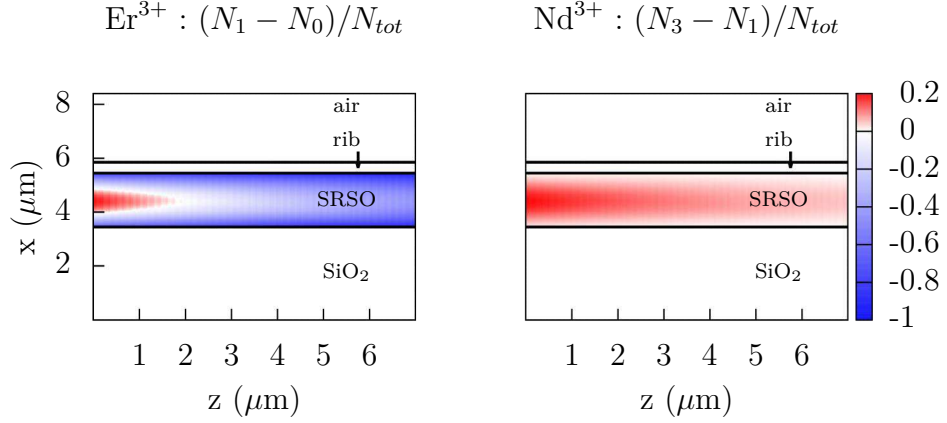


FIGURE 3.11 – Différence de population en fonction de la distance de propagation pour les ions erbium (à gauche) et les ions néodyme (à droite) pour une puissance de pompe de $1000 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2}$. L'échelle utilisée est identique pour les deux graphiques.

- Pour Nd^{3+} , la transition $3 \rightarrow 1$ à 1064 nm permet de caractériser le transfert et le gain.
- Pour Er^{3+} , la transition $1 \rightarrow 0$ à 1532 nm permet de caractériser le transfert et le gain.

La figure 3.11 est une vue longitudinale (xz) de la différence de populations à l'état stationnaire pour les guides d'ondes ng-Si : Er^{3+} et ng-Si : Nd^{3+} à une puissance de pompe de $1000 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2}$. L'échelle utilisée est la même pour les deux guides d'ondes : la couleur rouge est associée à des valeurs positives, la couleur bleue à des valeurs négatives et la couleur blanche à 0. Pour les deux guides d'ondes nous observons une diminution de la différence de population en fonction de la distance de propagation, ce qui peut être attribué au couplage entre les terres rares et les nanograins de silicium.

Pour les ions erbium, la différence de population est positive sur une longueur de $1,5 \mu\text{m}$, ce qui signifie que l'on a une inversion de population. Au-delà de cette longueur elle devient négative. Nous retrouvons le comportement d'un système à 3 niveaux, à savoir qu'il existe un seuil de pompage pour atteindre la transparence du milieu [120]. Au delà de $1,5 \mu\text{m}$ l'intensité du pompage est trop faible pour réaliser une inversion de population et le

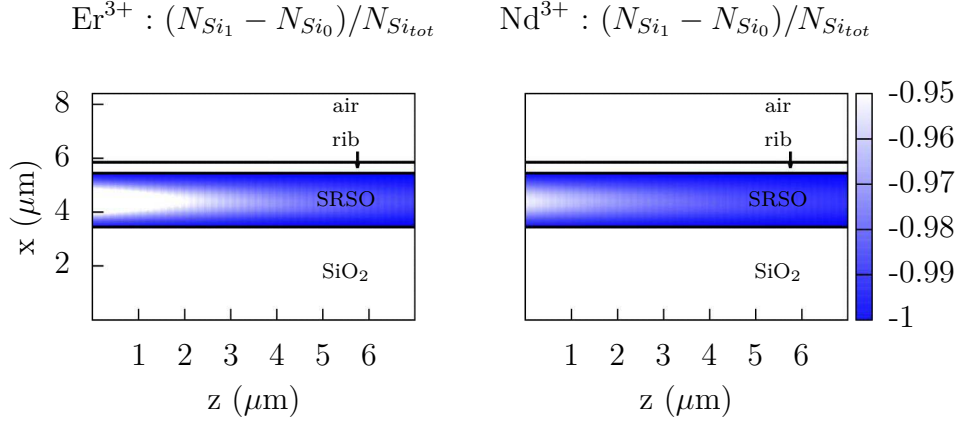


FIGURE 3.12 – Différence de population de ng-Si en fonction de la distance de propagation pour les systèmes ng-Si : Er^{3+} (à gauche) et ng-Si : Nd^{3+} (à droite) pour une puissance de pompe de $1000 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2}$. L'échelle utilisée est identique pour les deux graphiques.

niveau fondamental redevient plus peuplé que le niveau excité.

Pour les ions néodyme, la différence de population reste toujours positive sur la longueur du guide d'onde. Nous retrouvons ici la propriété d'un système à 4 niveaux, à savoir qu'il n'y a pas de seuil de pompage pour atteindre la transparence du milieu (figure 3.11). Même lorsque l'intensité de pompage diminue l'inversion de populations est réalisée car le niveau bas de la transition se dépeuple très rapidement vers le niveau fondamental.

Nous considérons maintenant la différence de population des ng-Si, pour les deux terres rares, dans la même vue longitudinale que la figure 3.11. Nous avons modélisé les ng-Si comme un système à deux niveaux ce qui implique que la différence de population est toujours négative. La diminution de la différence de population des ng-Si avec la longueur de propagation signifie qu'il y a une forte absorption de la pompe.

De la figure 3.12 nous avons extrait les valeurs de la différence de population des nanograins de silicium en fonction de z pour $x = 4,5 \text{ } \mu\text{m}$ et $y = 8 \text{ } \mu\text{m}$, c'est-à-dire au centre de la couche active. Sur la figure 3.13, nous observons sur la longueur entière du guide une différence de populations de ng-Si plus élevée dans le cas du système ng-Si: Er^{3+} que ng-Si: Nd^{3+} . Les pa-

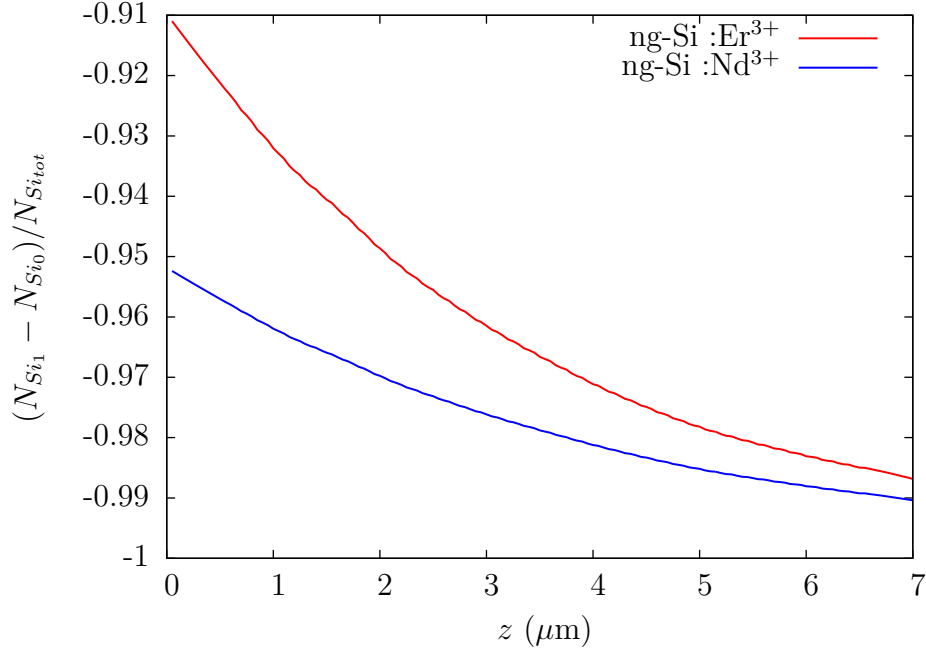


FIGURE 3.13 – Différence de population des ng-Si en fonction de la distance de propagation dans le cas d'un dopage avec l'erbium et le néodyme enregistrée à $x = 4,5 \mu\text{m}$ et $y = 8,55 \mu\text{m}$ (centre en de la couche active dans le plan (xy)) pour une puissance de pompe de $1000 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2}$

ramètres des ng-Si sont les mêmes avec les deux terres rares ce qui indique que la différence entre les deux systèmes est due à l'interaction des ng-Si avec les terres rares. En effet cette interaction est gouvernée par le coefficient de transfert K (qui est le même pour les deux terres rares), mais aussi par les temps de vie spécifiques des terres rares. Le temps de vie de la transition radiative majoritaire de Nd^{3+} est de $100 \mu\text{s}$ tandis que celui de Er^{3+} est de 10 ms . D'un point de vue dynamique, le niveau excité de Nd^{3+} se vide donc plus rapidement ce qui conduit à un transfert d'énergie de ng-Si vers Nd^{3+} qui est plus efficace que vers Er^{3+} .

La figure 3.14 montre l'influence de la puissance de pompe sur la différence de population pour Er^{3+} , Nd^{3+} et ng-Si. Nous observons que pour Er^{3+} l'inversion de population se produit au dessus d'une puissance de seuil ($600 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2}$) tandis que pour Nd^{3+} , l'inversion de population est réalisée quelque soit la valeur de pompe. Nous retrouvons le phénomène de puis-

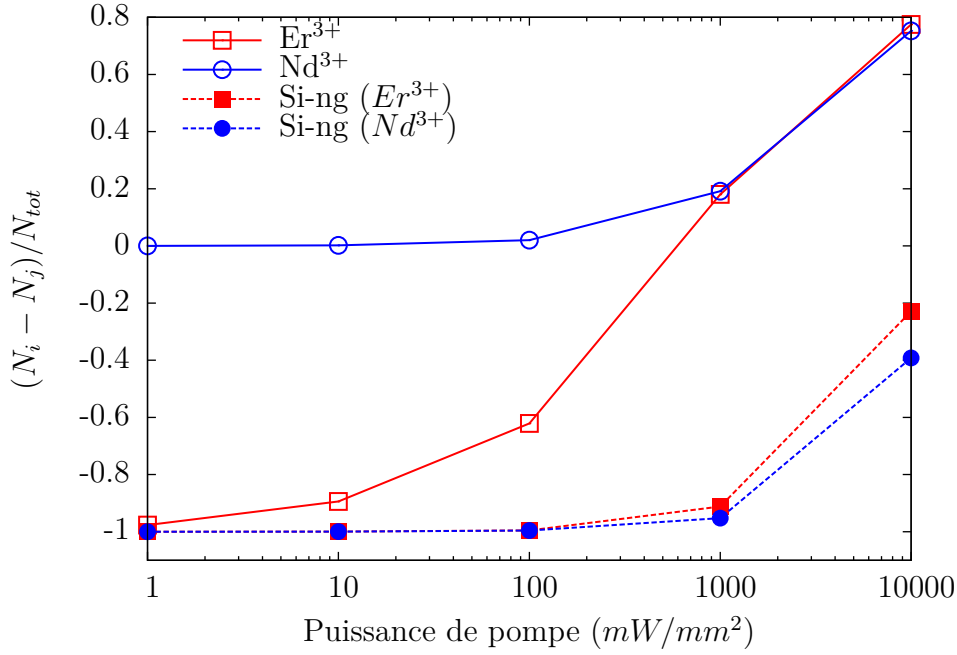


FIGURE 3.14 – Inversion de population de Nd^{3+} , Er^{3+} et des ng-Si enregistré à $x = 4,5 \mu m$ et $y = 8,55 \mu m$ (centre en de la couche active dans le plan (xy)) et $z = 0$ (début du guide d'onde) en fonction de la puissance de pompe

sance de pompe seuil pour un système à 3 niveaux. Pour une puissance de pompe supérieure ($1000 mW \cdot mm^{-2}$), la différence de population des deux terres rares atteint une valeur comparable, ce qui montre une saturation du mécanisme d'excitation.

Sur cette même figure (figure 3.14) nous traçons, en pointillé, la différence de population des ng-Si. Nous constatons qu'elle est toujours plus importante pour les ions erbium que pour les ions néodyme, ce qui signifie que le transfert est plus efficace des ng-Si vers Nd^{3+} que vers Er^{3+} .

3.3.3 Gain optique

Nous avons fait le choix de ne pas prendre en compte les pertes optiques dues au matériau pendant nos calculs mais d'en tenir compte à la fin de la simulation. Ces pertes sont dues à l'excès de silicium, ce qui introduit des défauts limitant la propagation du signal optique (absorption des porteurs

confinés, défauts non radiatifs, effet Auger) [116, 128–130] ainsi qu’aux défauts du guide.

En connaissant les niveaux de populations, nous pouvons calculer le gain brut par unité de longueur dans chaque cellule FDTD, $g_{dB/cm}$, à la longueur d’onde du signal (équation (3.20)).

$$g_{dB/cm}(x, y, z) = \frac{10}{\ln 10} (\sigma_{em} N_{sup}(x, y, z) - \sigma_{abs} N_{inf}(x, y, z)) \quad (3.20)$$

où N_{sup} et N_{inf} sont respectivement les niveaux supérieurs et inférieurs de la transition considérée, et σ_{em} et σ_{abs} sont les sections efficaces d’émission et d’absorption. Pour les ions erbium, nous avons donc $N_{sup} = N_1$ et $N_{inf} = N_0$ tandis que pour les ions néodyme $N_{sup} = N_3$ et $N_{inf} = N_1$. Pour les deux terres rares nous supposons $\sigma_{abs} = \sigma_{em}$. Le gain brut local à $x = 4,5 \mu\text{m}$ et $y = 8,55 \mu\text{m}$ (au centre en de la couche active dans le plan (xy)) et $z = 0$ (début du guide d’onde) en fonction de la puissance de pompe est représenté figure 3.15. Nous avons choisi les valeurs au début du guide d’onde afin de se situer dans la zone de pompage la plus favorable. En retranchant les pertes optiques mesurées expérimentalement nous pouvons avoir accès au gain net.

Pour le guide d’onde ng-Si :Er³⁺, nous trouvons un seuil de puissance de pompe de 1550 mW.mm⁻² afin d’observer un gain brut positif. La plus grande puissance de pompe testée (10⁴ mW.mm⁻²) conduit à un gain de 2 dB/cm. Dans le but d’estimer le gain net, nous devons tenir compte des pertes. D. Navarro-Urrios *et al* [132] ont travaillé expérimentalement sur des échantillons comparables au guide d’onde que l’on modélise. Ces échantillons possèdent une couche de SiO₂ au-dessus de laquelle a été déposée une couche de SRSO puis une couche de SiO₂ par pulvérisation cathodique RF (radio-fréquence) [54, 65] réalisée au laboratoire CIMAP. Dans le but de produire un guide d’onde, D. Navarro-Urrios *et al* [132] ont ensuite gravé la couche de SiO₂ par un procédé de gravure sèche (*dry etching*) afin d’obtenir un ruban. Leurs mesures montrent des pertes égales à 3 dB/cm à 1552 nm. La plus grande puissance de pompe testée (10⁴ mW.mm⁻²) ne permet donc pas d’observer un gain net positif. Or D. Navarro-Urrios *et al* [132] trouvent un gain net, faible mais positif de 0.3 dB/cm, ce que nous pouvons expliquer par les fortes

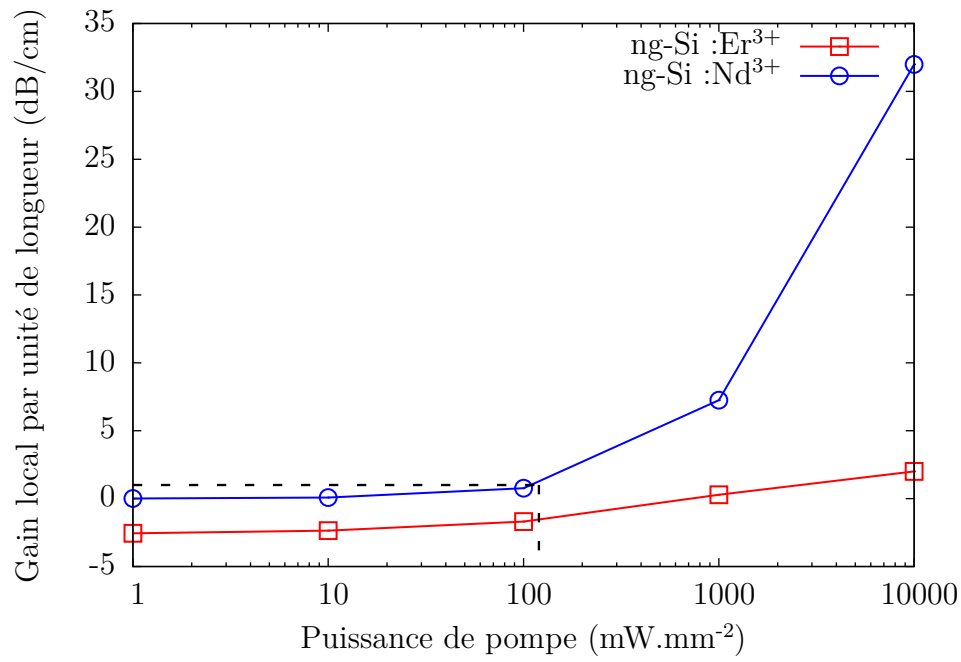


FIGURE 3.15 – Gain brut local à $x = 4,5 \mu\text{m}$ et $y = 8,55 \mu\text{m}$ (centre en de la couche active dans le plan (xy)) et $z = 0$ (début du guide d'onde) en fonction de la puissance de pompe pour ng-Si :Er³⁺ et ng-Si :Nd³⁺. Les pertes trouvées par P. Pirasteh *et al* [131] sont représentées en pointillés.

puissances de pompe utilisées dans leurs expériences (de 4.10^5 mW.mm⁻² à 6.10^6 mW.mm⁻²).

Pour le guide d'onde ng-Si :Nd³⁺ quelque soit la puissance de pompe nous trouvons un gain brut positif dont la valeur maximale est de 30 dB/cm pour une puissance de pompe de 10^4 mW.mm⁻². De même que pour le guide d'onde ng-Si :Er³⁺, nous relevons les pertes trouvées expérimentalement sur un guide d'onde comparable. P. Pirasteh *et al* [131] ont effectué des mesures sur un guide d'onde ng-Si:Nd³⁺ fabriqué au laboratoire CIMAP [133] et trouvent des pertes égales à 0.8 dB/cm. Nous avons reporté ces pertes sur la figure 3.15, ce qui amène à une puissance de pompe minimale de 130 mW.mm⁻² afin de compenser ces pertes.

Le gain local par unité de longueur obtenu pour le guide d'onde ng-Si:Nd³⁺, est toujours supérieur à celui obtenu avec le guide d'onde ng-Si:Er³⁺ quelque soit la puissance de pompe. Cet écart augmente lorsque la puissance de pompe augmente. Cela peut être dû à l'efficacité du transfert entre les nanograins de silicium et les ions terres rares, mais aussi à la section efficace d'absorption/d'émission qui est différente ($\sigma_{\text{Er}^{3+}} = 6.10^{-21}$ cm² contre $\sigma_{\text{Nd}^{3+}} = 10^{-19}$ cm²).

Les trois catégories d'amplificateurs optiques à effet laser (EDFA, EDWA et SOA) à bandes conventionnelles (C-band) et disponibles dans le commerce présentent un niveau de gain d'environ 20 à 25 dB avec une longueur variant du centimètre à quelques mètres pour les EDFA et pour une puissance consommée de quelques watts nécessaire au pompage optique ou électrique [134]. Pour le guide d'onde ng-Si:Er nous trouvons un gain net très faible et une inversion de population sur une longueur de seulement 1,5 μ m. Nous pouvons conclure à l'impossibilité réaliser un amplificateur optique avec une configuration de co-propagation du signal et de la pompe. Le gain net d'environ 30 dB/cm par unité de longueur accessible avec un guide d'onde ng-Si :Nd³⁺ pourrait entraîner une amplification importante, du même ordre que les guides d'ondes commerciaux. Un pompage par le haut du guide d'onde (*top-pumping*) serait alors nécessaire afin d'exciter uniformément les populations sur la longueur du guide. A notre connaissance il n'y a pas d'amplificateur optique disponible commercialement basé sur un

guide d'onde ng-Si:Nd³⁺. Cependant un guide d'onde développé par J. Yang *et al* [135] de type Al₂O₃ : Nd³⁺ permet d'arriver à un gain interne de 6 dB/cm pour une puissance de pompe de 3,672.10⁷ mW.mm⁻².

3.4 Bilan et perspectives

Nous avons présenté dans ce chapitre les résultats obtenus par un algorithme basé sur la méthode ADE-FDTD de guides d'ondes dopés avec des nanograins de silicium (ng-Si) et des ions terres rares qui sont soit des ions erbium (Er³⁺) ou des ions néodyme (Nd³⁺). Les cartes de champs ont permis de vérifier le guidage et l'intensité du champ électromagnétique à l'intérieur de la couche active. Grâce à la méthode ADE-FDTD, nous avons accès à la répartition spatiale des différentes populations, ce qui a permis de calculer le gain brut. Ainsi un guide d'onde ng-Si:Nd³⁺ présente un gain brut de 30 dB/cm supérieur au gain brut de 2 dB/cm dans un guide d'onde ng-Si:Er³⁺. L'idéal maintenant serait de poursuivre le travail expérimental entamé dans le cadre du projet européen LANCER (*Light Amplifiers with Nanoclusters and Erbium*) en 2006-2009 et de l'ANR DAPHNES (Dispositifs Appliqués à la PHotonique à base de NÉodyme et de Silicium) en 2009-2012.

Un travail important a été effectué afin de développer le nouvel algorithme. Des méthodes originales ont été développées comme la séparation des variables "lentes" et "rapides" et la superposition des polarisations afin de modéliser les sections efficaces tout en modulant le temps de calcul pour atteindre le régime stationnaire. L'algorithme étant maintenant fonctionnel, de nombreuses pistes peuvent être explorées. Concernant les paramètres, certains restent à affiner, notamment le coefficient de transfert K entre ng-Si et Nd³⁺, ce qui pourrait faire l'objet d'une étude expérimentale. Dans de nouvelles simulations nous pourrions prendre en compte le processus d'up-conversion pour Nd³⁺ qui existe entre le niveau $^4F_{3/2}$ et les niveaux $^4I_{11/2}$ et $^2G_{9/2}$ ce qui permettra d'analyser l'influence de celui-ci. Il faudra modéliser un niveau supplémentaire ($^2G_{9/2}$) et ajouter un terme du type $C_{up}N_3^2$ aux équations (3.8), (3.10) et à l'équation du niveau ($^2G_{9/2}$).

Nous avons mis en évidence que la pompe est fortement absorbée par

les nanograins de silicium dans les deux guides d'onde. Sur un guide d'onde d'une longueur de $7\mu\text{m}$, l'intensité de la pompe est divisée par 2. Dans ce cas il serait judicieux d'adopter un pompage "par le haut" (*top-pumping*), ce qui permettrait d'avoir une intensité de pompe égale sur la longueur du guide [136, 137]. Par la méthode ADE-FDTD ce type de pompage nécessite de prendre quelques précautions. En effet il n'est pas possible d'utiliser la méthode TF/SF telle que nous l'avons implémentée car le guide d'onde serait en contact avec la frontière TF/SF. L'ajout d'une interface à la frontière TF/SF va créer une onde parasite [138]. Pour créer une onde du type *top-pumping*, il faut donc utiliser la solution de la source dure avec diaphragme. Le diaphragme est un matériau non physique permettant d'absorber le champ électromagnétique avec un certain profil, ce qui pourrait donc permettre de reproduire l'ouverture angulaire d'émission d'une diode laser.

Chapitre 4

Nanoparticules d'or

Sommaire

4.1	Nanoparticules d'or individuelles	120
4.1.1	Fabrication de nanoparticules et mesure EELS . .	120
4.1.2	Étude par la méthode ADE-FDTD	128
4.1.3	Vérification par un modèle analytique	141
4.2	Nanoparticules d'or en réseau	142
4.2.1	Expérience	144
4.2.2	Étude par la méthode DDA	146
4.3	Bilan du chapitre	151

Nous étudions, dans ce quatrième chapitre, des nanoparticules d'or individuelles (4.1) et en réseau (4.2). Ces nanoparticules sont fabriquées expérimentalement par l'équipe de Giancarlo Rizza du laboratoire des solides irradiés (LSI) à l'école polytechnique dans le cadre de l'ANR SHAMAN. Les nanoparticules d'or individuelles sont ensuite étudiées par spectroscopie de pertes d'énergies des électrons (EELS). L'objectif du paragraphe 4.1 est de comparer les résultats obtenus par EELS avec les résultats obtenus par la méthode ADE-FDTD. L'objectif du paragraphe 4.2 est de déterminer numériquement les conditions pour observer une résonance de type Fano afin de guider la fabrication expérimentale des échantillons.

4.1 Nanoparticules d'or individuelles

Nous présentons, dans le paragraphe 4.1.1, la technique utilisée expérimentalement pour fabriquer des nanosphères d'or incluses dans une matrice de silice. L'irradiation par ions lourds permet de modifier leur forme pour obtenir un octaèdre, un bâtonnet ou encore un fil. Ces nanoparticules sont ensuite analysées par spectrométrie de pertes d'énergie des électrons (*electron energy loss spectroscopy*, *EELS* en anglais). Dans le paragraphe (4.1.2) nous étudions ensuite ces nanoparticules numériquement par la méthode ADE-FDTD dans le but d'effectuer une comparaison avec les mesures expérimentales. Enfin la courbe de dispersion déterminée expérimentalement et numériquement est reproduite par un modèle analytique (4.1.3).

4.1.1 Fabrication de nanoparticules et mesure EELS

Ce paragraphe se décompose en deux parties : la première expose la technique de fabrication des nanoparticules par irradiation puis la seconde présente les mesures effectuées par EELS.

Irradiation par ions lourds

L'irradiation de nanoparticules par ions lourds est une technique expérimentale permettant de modifier la géométrie de nanoparticules. Le principe

est d'irradier avec un faisceau d'ions un échantillon contenant des nanosphères métalliques à la surface d'un substrat [139] ou encore à l'intérieur d'une matrice [140], ce qui conduit à leur déformation. L'énergie du faisceau d'ions peut varier de quelques MeV à quelques centaines de MeV [140–142]. Il est usuel de définir la fluence (cm^{-2}), correspondant à la densité d'ions intégrée dans le temps, qui permet de mesurer la quantité d'ions reçue par unité de surface de l'échantillon. Le faisceau d'ions lourds peut être composé d'iode, de krypton ou encore de xénon.

L'équipe de G. Rizza du laboratoire des solides irradiés (LSI) à l'école Polytechnique travaille avec des échantillons contenant des nanosphères métalliques incluses dans une matrice de silice (SiO_2) qui sont produites par nanolithographie et un procédé de lift-off. Les principales étapes de fabrication sont schématisées figure 4.1. Deux couches de silice et de polymère sont déposées sur un substrat de silicium. Des trous sont ensuite créés par lithographie par faisceau d'électrons. Leur diamètre et leur espacement sont contrôlés. Dans une troisième étape une couche d'or est déposée. La couche de polymère sacrificielle est ensuite détruite par dissolution et lavage (lift-off). Une nouvelle couche de silice est déposée et enfin l'échantillon est chauffé à 900°C pendant 1h afin de transformer les cylindres en sphères.

L'échantillon produit par nanolithographie est ensuite irradié par un faisceau de 74 MeV de Kr au GANIL (grand accélérateur national d'ions lourds) à Caen [140]. Les formes des particules obtenues dépendent du diamètre initial et de la fluence (figure 4.2) :

- Pour un diamètre initial compris entre 18 et 30 nm, il est possible d'obtenir un fil dont la longueur varie en fonction de la fluence.
- Pour un diamètre initial compris entre 30 et 70 nm, la fluence maximale testée (5.10^{14}cm^{-2}) ne permet pas d'obtenir un fil, mais seulement une nanoparticule facettée.
- Pour un diamètre important (75-94 nm), la fluence maximale testée (5.10^{14}cm^{-2}) ne permet pas de déformer significativement la particule.

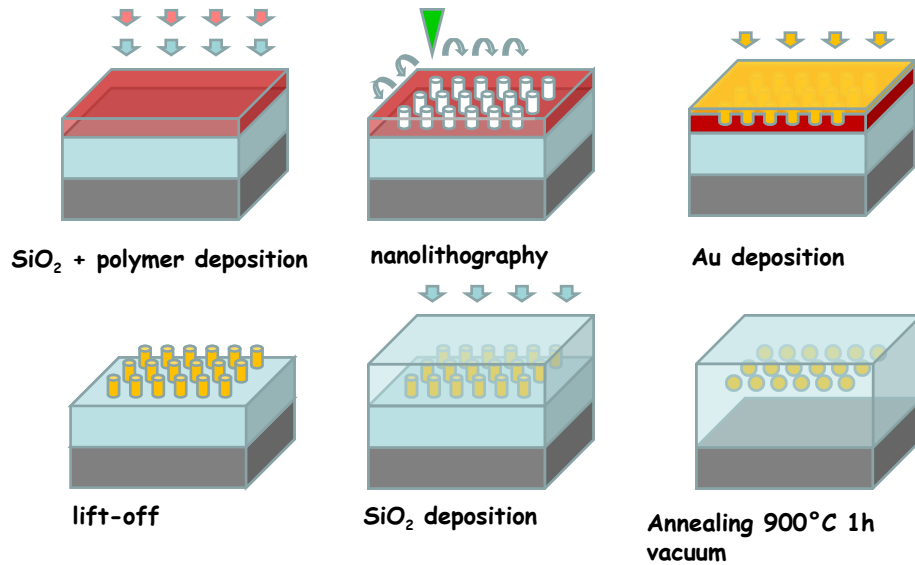


FIGURE 4.1 – Les différentes étapes de la nanolithographie. Figure extraite du travail de l'équipe de G. Rizza.

Mesure par EELS

La spectroscopie de pertes d'énergie des électrons permet détecter la résonance plasmonique d'une nanoparticule. C'est une technique de microscopie en transmission utilisant un faisceau d'électrons ayant une énergie typique comprise entre 100 à 400 keV, envoyé sur un échantillon contenant des nanoparticules comme le montre la figure 4.3. Derrière l'échantillon est situé un détecteur annulaire en champ sombre à grand angle (*high-angle annular dark-field imaging*, *HAADF* en anglais) ce qui permet d'avoir une image de l'échantillon. Un détecteur HAADF collecte les électrons à grand angle de diffusion qui sont principalement dus à une diffusion incohérente (c'est-à-dire avec perte d'énergie). Le contraste d'une image HAADF est fortement dépendant du numéro atomique moyen du diffuseur (Z), ce qui est adapté pour des nanoparticules d'or ($Z=79$) incluses dans une matrice de silice ($Z \simeq 10$).

Les électrons diffusés inélastiquement sont analysés par un spectromètre EELS qui disperse les électrons en fonction de leurs énergies par une différence de potentiel appliquée entre deux électrodes. Cela permet d'obtenir un spectre EELS, qui représente le nombre d'électrons détectés (counts) en

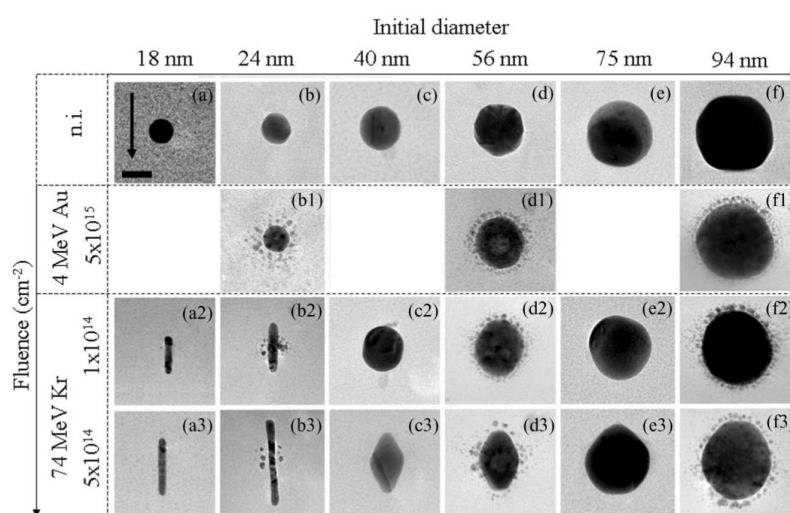


FIGURE 4.2 – Évolution de la forme de nanoparticules d'or en fonction de la taille initiale (axe horizontal) et de la fluence (axe vertical). Figure extraite de Rizza *et al* (2012) [140].

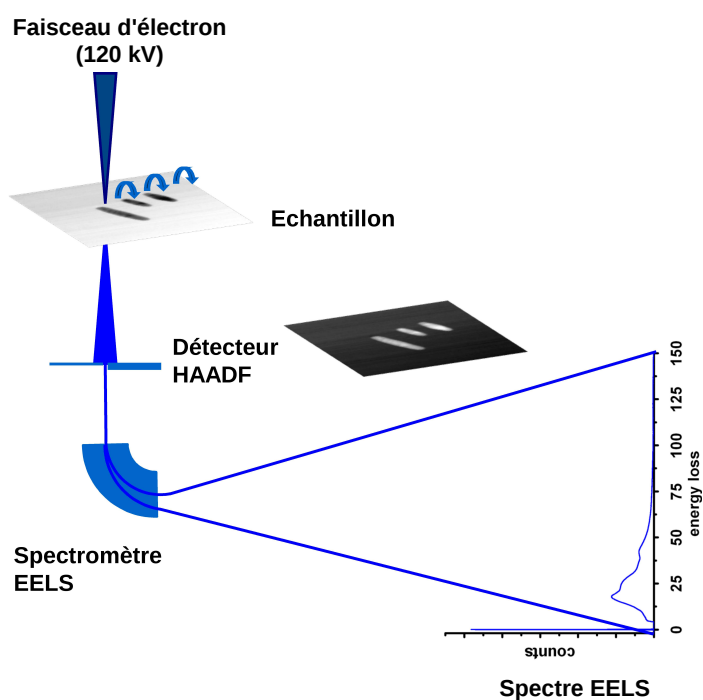


FIGURE 4.3 – Principe de fonctionnement d'un spectromètre EELS.

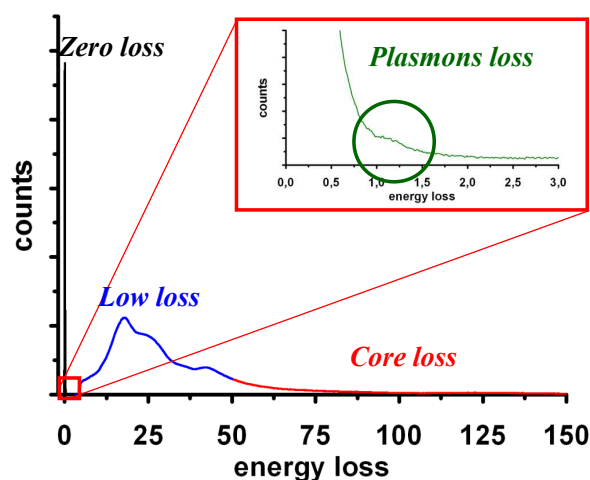


FIGURE 4.4 – Spectre EELS représentant le nombre de coups en fonction de l'énergie perdue (en eV). En insert est présenté le domaine d'énergie correspondant à l'excitation collective des électrons (plasmons).

fonction de l'énergie perdue à la traversée de l'échantillon. La figure 4.4 présente un spectre EELS typique. A 0 eV le pic nommé "zero loss" avec une amplitude importante est dû aux électrons n'ayant pas perdu d'énergie lors de la traversée de l'échantillon. La quantité d'énergie perdue nous renseigne sur le processus physique. Pour de faibles énergies, typiquement inférieures à 10 eV, le faisceau d'électrons a excité de manière collective les électrons libres de l'échantillon. Ce phénomène, "plasmon loss" est présenté dans l'encart de la figure 4.4. Pour une énergie perdue d'environ 10 eV à 50 eV, le faisceau d'électrons a provoqué des transitions inter et intra bandes (zone "low loss"). Enfin une énergie perdue supérieure à 50 eV est le reflet de l'excitation des électrons de cœurs de l'atome vers la bande de conduction (zone "core loss"). Dans la suite nous étudions uniquement la partie plasmon du spectre EELS, et notre domaine d'étude sera généralement compris entre 0.5 eV et 5 eV.

Le résultat de la spectroscopie par pertes d'énergie d'une nanosphère d'or de rayon 28 nm est présenté figure 4.5 (a). Le pic à 2,25 eV, indique une résonance collective des électrons à cette énergie (mode plasmon). La technique expérimentale EELS permet de créer, en balayant l'échantillon, une carte 2D de la nanoparticule. Un code de couleur est appliqué afin de

visualiser le nombre d'électrons ayant perdu une énergie donnée. La figure 4.5 (b) présente l'image HAADF d'une nanosphère d'or avec un rayon de 28 nm. L'image EELS correspondante est présentée pour $E = 2,25$ eV. Le maximum d'énergie perdue par les électrons se situe à la surface de la nanoparticule.

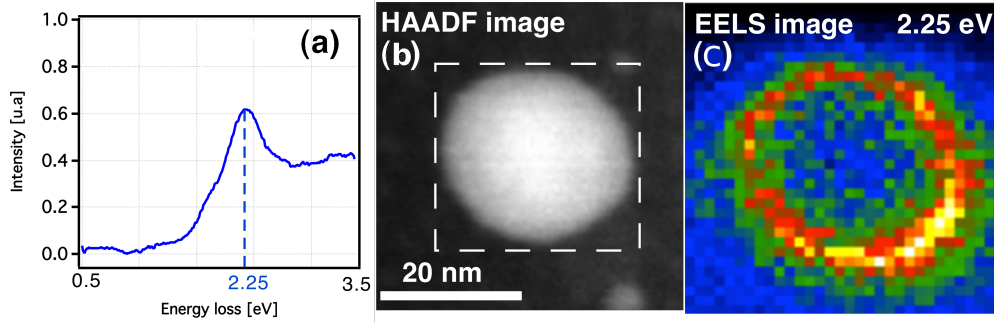
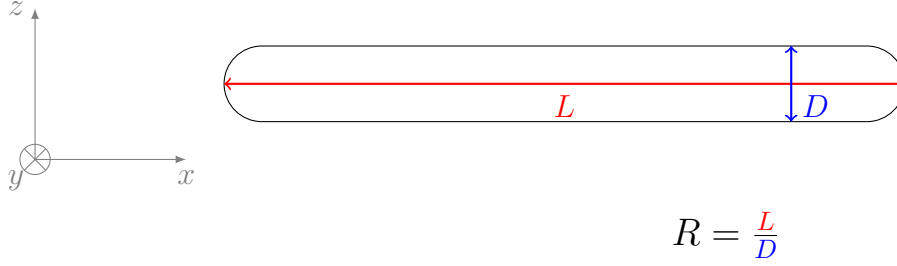
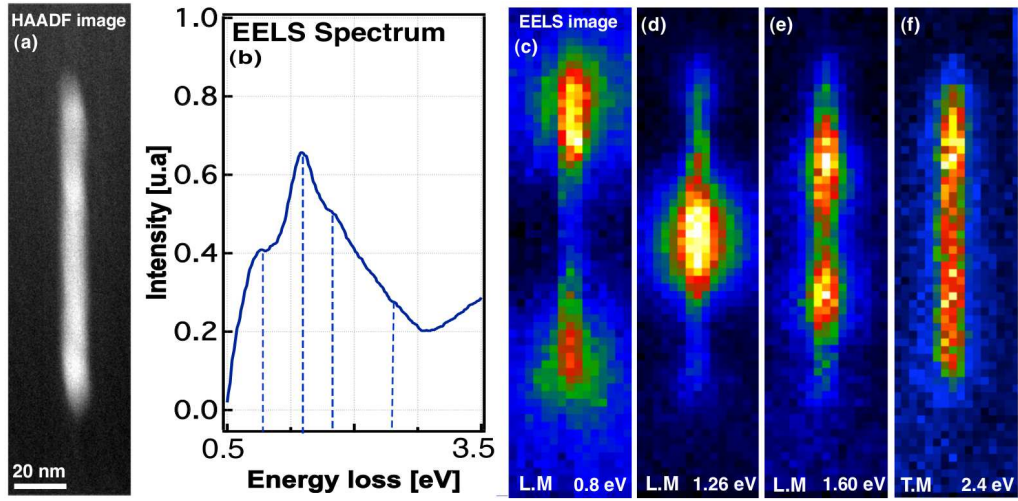


FIGURE 4.5 – (a) Spectroscopie par pertes d'énergie d'une nanosphère d'or de diamètre 28 nm dans une matrice de silice. L'énergie de résonance est située à 2.25 eV. (b) Image STEM-HAADF de cette nanosphère. (c) Image EELS pour une perte d'énergie de 2.25 eV. Figures adaptées du travail de G. Rizza.

L'irradiation par ions lourds d'une nanosphère d'or d'un diamètre initial inférieur à 30 nm dans une matrice de silice se fait à volume constant [140]. Le diamètre initial de la nanoparticule d'or $D_0 = 28$ nm conduit à un volume de référence V_0 de $1,15 \cdot 10^{-23}$ m³. Pour caractériser les différents objets obtenus par irradiation nous définissons le rapport d'aspect R , qui est égal au diamètre D divisé par la longueur L de la nanoparticule, comme le montre la figure 4.6. Les nanoparticules obtenues par irradiation ont un rapport d'aspect R variant de 3 à 15. Nous présentons en détail l'exemple d'un nanofil de rapport d'aspect $R = 12$, correspondant à $L = 120$ nm et $D = 10$ nm avant de présenter l'ensemble des résultats. L'image HAADF et le spectre EELS pour cette nanoparticule ainsi que les images EELS sont présentés figure 4.7. Le spectre EELS a permis de relever quatre énergies de résonance à 0,8 eV, 1,26 eV, 1,60 eV et 2,4 eV. Les images laissent penser que les trois premiers pics correspondent à des modes longitudinaux tandis que celui à 2,4 eV correspond à un mode transversal car l'intensité est uniforme le long de l'axe du nanofil.



$$R = \frac{L}{D}$$

FIGURE 4.6 – Définition du rapport d'aspect R .FIGURE 4.7 – (a) Image HAADF d'une nanoparticule d'or de rapport d'aspect $R = 12$. (b) Spectre EELS correspondant. (c-f) Images EELS à différentes énergies : 0,8 eV, 1,26 eV, 1,60 eV et 2,4 eV. Figure adaptée du travail de l'équipe de G. Rizza.

L'ensemble des résultats obtenus est présenté dans la figure 4.8 où la longueur d'onde de résonance λ est tracée en fonction du rapport d'aspect R pour un volume $V_0 = 1,15 \cdot 10^{-23} \text{ m}^3$ fixé. La couleur indique les différentes énergies trouvées pour un même objet. Seules les énergies de résonance correspondant à un mode longitudinal sont représentées. Nous remarquons que le nombre de résonances augmente avec le rapport d'aspect R .

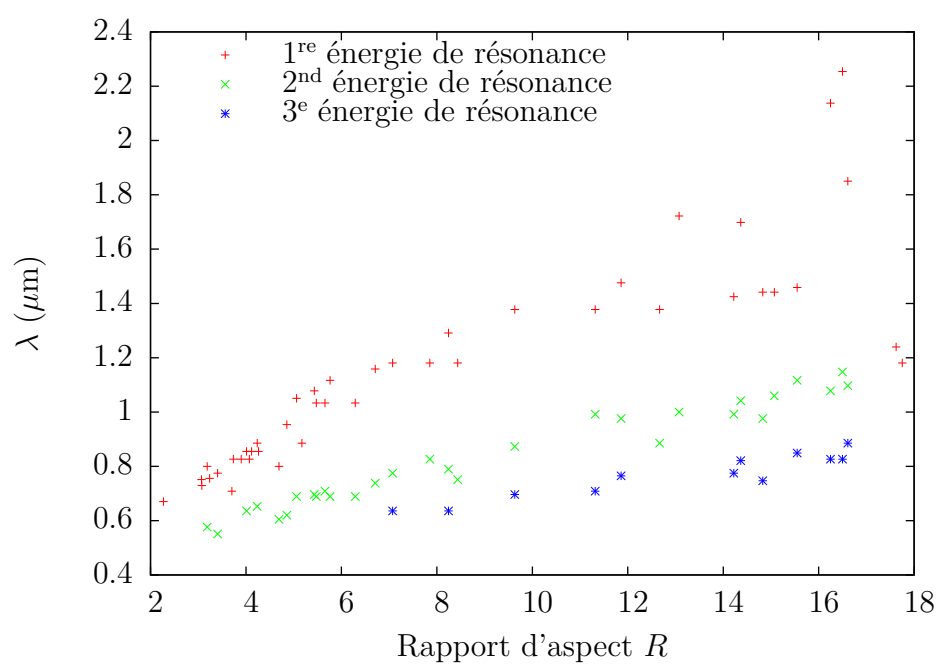


FIGURE 4.8 – Évolution de la longueur d'onde de résonance λ en fonction du rapport d'aspect R pour un volume $V_0 = 1,15 \cdot 10^{-23} \text{ m}^3$ fixé.

4.1.2 Étude par la méthode ADE-FDTD

Nous proposons d'étudier numériquement les objets obtenus par irradiation afin de les comparer aux mesures expérimentales faites par spectroscopie de pertes d'énergie. Nous commençons par décrire les caractéristiques du champ électromagnétique incident avant de présenter les différentes observables permettant de caractériser un mode plasmon. Nous terminerons par tracer la relation de dispersion d'un nanofil d'or à partir des résultats numériques.

Caractéristiques du champ incident

Pour chaque objet étudié, nous cherchons à connaître la réponse optique en champ proche en fonction notamment de la pulsations ω du champ incident. Une solution possible, mais qui contraint à effectuer autant de simulations que de pulsation ω , est de simuler une onde ayant une forme temporelle en $\sin(\omega t)$. La solution que nous avons privilégiée consiste à utiliser une source polychromatique en imposant au champ incident la forme temporelle suivante :

$$f(\vec{r}, t) = f(\vec{r}) \frac{\sin \omega_0 t}{\omega_0 t} \quad (4.1)$$

L'amplitude du champ à une pulsation donnée est déterminée, dans la méthode ADE-FDTD, par une transformée de Fourier (chapitre 2). Une source limitée dans le temps permet donc de sonder un ensemble de fréquences. Un sinus cardinal présente l'intérêt d'avoir un spectre en fréquence qui est constant entre 0 et ω_0 . ω_0 doit alors être supérieur à la valeur de la plus grande pulsation que l'on souhaite étudier.

La figure 4.9 présente la transformée de Fourier calculée pour n variant de 0 à 8.10^4 de la fonction $f(t = n\Delta t) = \frac{\sin \omega_0 n\Delta t}{\omega_0 n\Delta t}$ avec $\omega_0 = 8.10^{15}$ rad.s⁻¹ (correspondant à $E = 5.2$ eV) et $\Delta t = 1,35.10^{-18}$ s. Cependant sur une plage en énergie de 0 à 3 eV, l'amplitude de la transformée de Fourier reste du même ordre de grandeur. Nous utiliserons le même nombre de pas de temps (8.10^4) pour toutes les simulations de ce chapitre. Ce choix est un

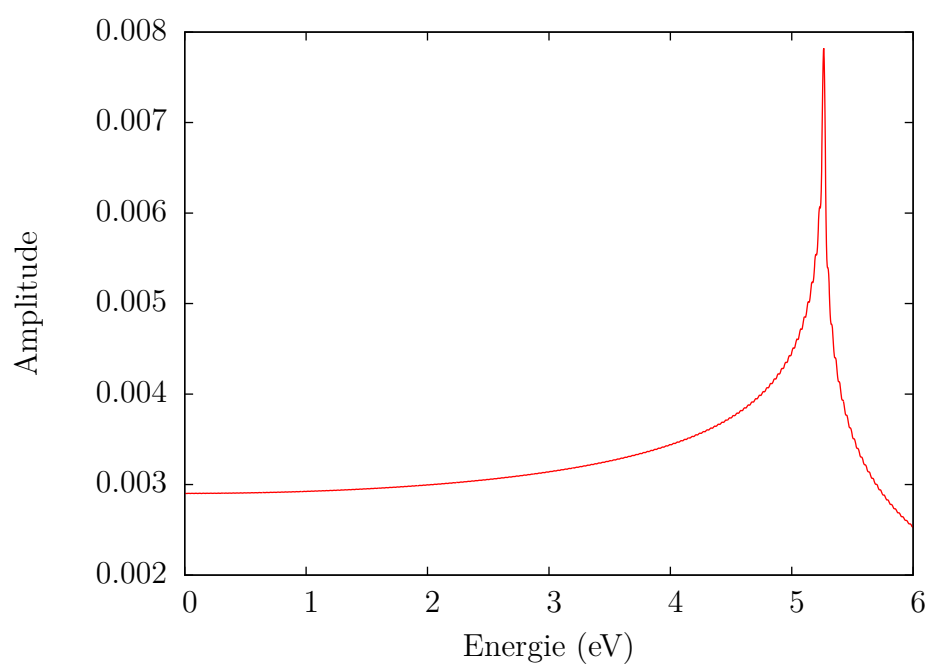


FIGURE 4.9 – Amplitude de la transformée de Fourier calculée pour n variant de 0 à $8 \cdot 10^4$ de la fonction $f(t = n\Delta t) = \frac{\sin \omega_0 n \Delta t}{\omega_0 n \Delta t}$ avec $\omega_0 = 8 \cdot 10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ ($E = 5.2 \text{ eV}$) et $\Delta t = 1,35 \cdot 10^{-18} \text{ s}$.

Paramètre	Valeur
Pas d'espace $\Delta_{x,y,z}$ (nm)	1
Nombre de Courant	0,7
Δt (s)	$1,35 \cdot 10^{-18}$
ω_0 (rad.s ⁻¹)	$8 \cdot 10^{15}$
Nombre de pas de temps	80000

TABLE 4.1 – Paramètres utilisés pour la simulation par la méthode ADE-FDTD.

compromis entre un temps de calcul acceptable (de l'ordre de 24h sur les ressources du CRIHAN) et une amplitude de transformée de Fourier la plus constante possible entre 0 à 3 eV.

Identification d'un mode plasmon en champ proche

Nous discutons maintenant des différentes observables et des conditions d'excitation afin de pouvoir identifier un mode plasmon en champ proche avec l'exemple d'un nanofil d'or de longueur $L = 120$ nm et de rayon $\rho_0 = 5$ nm (figure 4.6) inclus dans une matrice de silice d'indice $n = 1,45$. Le fil est modélisé par un cylindre de rayon ρ_0 terminé par deux demi-sphères de même rayon. La fonction diélectrique de l'or est reproduite par un modèle de Drude-Lorentz avec 5 oscillateurs de Lorentz dont les paramètres sont présentés dans le chapitre 2. Nous souhaitons connaître la réponse optique des différents objets étudiés entre $\lambda_{min} = 300$ nm et $\lambda_{max} = 2500$ nm. Le pas d'espace Δ utilisé est très inférieur à la longueur d'onde λ ($\Delta = \lambda_{min}/300$), ce qui permet de limiter le phénomène d'approximation en escalier (*staircase approximation*) [143–145]. Les principaux paramètres utilisés pour la simulation sont présentés dans le tableau 4.1.

Nous étudions la réponse du fil à une excitation de type onde plane en fonction de la direction de propagation de l'onde incidente pour 3 cas particuliers : $\theta = 0^\circ$, $\theta = 45^\circ$, $\theta = 90^\circ$ (figure 4.10). Cette onde est générée par la méthode *total-field/scattered field* présentée au paragraphe 2.4.2, ce qui nous permet de connaître le champ incident que l'on note E_0 . Pour chaque angle d'incidence nous représentons le rapport E/E_0 en fonction de l'énergie

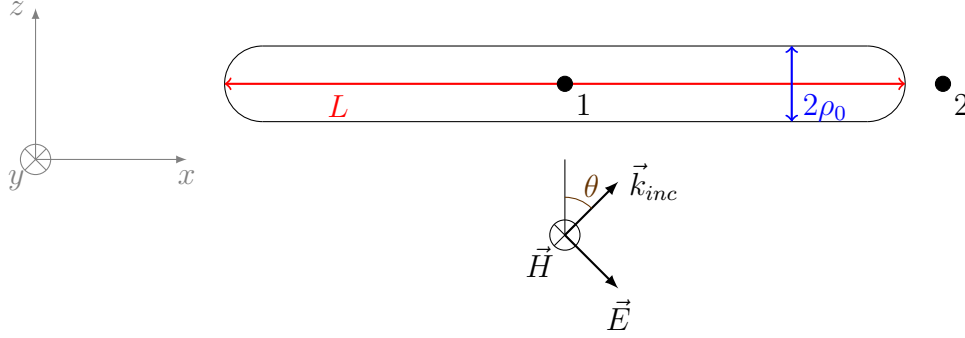


FIGURE 4.10 – Schéma de l'expérience numérique.

de l'onde incidente, où E est l'amplitude du champ total prenant en compte la diffusion et l'absorption du nanofil d'or. Ce rapport permet de caractériser l'augmentation de champ (*field enhancement*) due à une résonance plasmonique.

Nous relevons E/E_0 en deux points (figure 4.10) : au centre de masse du fil (point n°1) et à l'extérieur du fil à 10 nm selon l'axe x (point n°2). L'extrémité est choisie selon l'axe x car une résonance longitudinale va induire une oscillation des électrons selon ce même axe et donc une augmentation de champ électrique. Nous prenons une distance de 10 nm par rapport à la surface du fil pour ne pas se situer dans une zone où le champ est fortement variable. En effet, la discrétisation en cellules cubiques a pour conséquence des maillages en marche d'escalier au niveau des interfaces courbées, ce qui peut entraîner des phénomènes d'approximation *staircase* qui conduisent à des amplitudes de champ électromagnétique non physiques [144, 145].

Le rapport E/E_0 en fonction de l'énergie est présenté figure 4.11. Pour chaque angle d'incidence nous remarquons que le rapport E/E_0 au centre du fil tend vers 1 pour des énergies supérieures à 2-2,5 eV, ce qui signifie que l'objet devient transparent. Nous décrivons la figure 4.11 en fonction de l'angle d'incidence du champ électromagnétique.

Incidence à 0 ° Le champ électrique \vec{E} a alors une composante E_x et le champ magnétique \vec{H} une composante H_y . Pour cet angle d'incidence nous observons les mêmes pics (0,68 eV et 1,50 eV) pour les spectres pris au centre

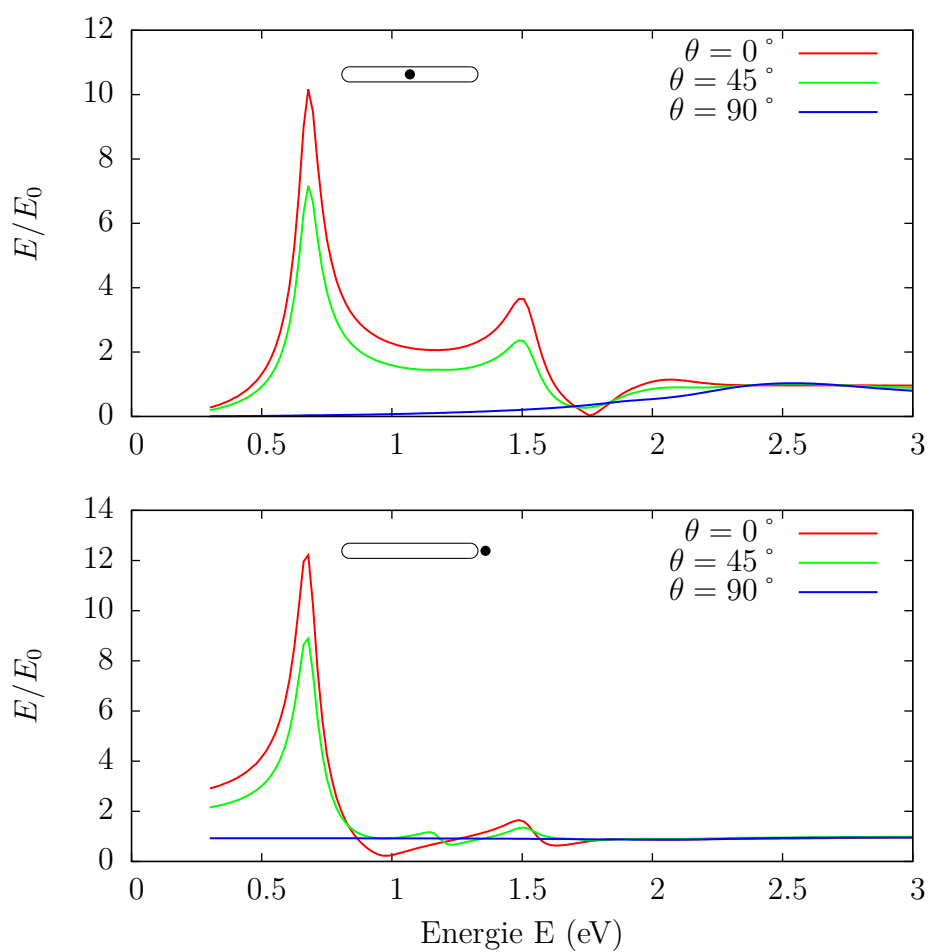


FIGURE 4.11 – Augmentation du champ électrique (E/E_0) en fonction de l'énergie relevé à deux endroits : au centre de la nanoparticule (en haut) et à 10 nm de l'extrémité selon l'axe du fil (en bas) pour trois angles d'incidence : $\theta = 0^\circ$, $\theta = 45^\circ$ et $\theta = 90^\circ$.

de la particule et à l'extrémité. Nous constatons que la position des pics est indépendante de l'endroit où E/E_0 est relevé et nous avons pu le vérifier en relevant le rapport E/E_0 à d'autres endroits (qui ne sont pas présentés ici). Le phénomène d'augmentation de champ est particulièrement bien mis en évidence ici, puisqu'à 10 nm de la surface du fil et à 0,68 eV, le champ total E est 12 fois supérieur au champ incident E_0 . Ces deux pics nous informent qu'il y a deux énergies de résonance. L'orientation du champ électrique incident nous informe que ce sont des résonances longitudinales, c'est-à-dire que les électrons oscillent collectivement suivant l'axe du fil.

Incidence à 45° Le champ électrique \vec{E} a deux composantes E_x et E_z et le champ magnétique \vec{H} une composante H_y . Le spectre de E/E_0 au centre du fil présente les deux mêmes pics que pour $\theta = 0^\circ$ ($E=0,68$ eV, $E=1,50$ eV) plus un pic à 2,53 eV. Le spectre relevé à l'extrémité du fil met en évidence un nouveau pic à 1,15 eV. Sur le spectre au centre du fil les amplitudes du pic à 0,68 eV, et dans une moindre mesure celui à 1,50 eV, sont trop importantes pour distinguer celui à 1,15 eV. Le pic à 1,15 eV n'apparaît pas en incidence normale ($\theta=0^\circ$) car l'excitation est symétrique par rapport au plan (xy) passant par le centre du fil et se couple uniquement avec des modes de résonance pairs. Avec une incidence oblique la symétrie de la source d'excitation est rompue et il est possible d'exciter des modes pairs et impairs [146–148]. Pour résumer les modes de résonances à 0,68 eV et 1,50 eV sont pairs tandis que celui à 1,15 eV est impair.

Incidence à 90° Le champ électrique \vec{E} a une composante E_z et le champ magnétique \vec{H} une composante H_y . Un seul pic est observable au centre du fil, à 2,53 eV, dont la position est identique avec l'angle d'incidence $\theta = 45^\circ$. Ce pic correspond à un mode de résonance transverse : les électrons oscillent selon l'axe z du nanofil et créent une augmentation de champ selon ce même axe. En incidence normale ($\theta=0^\circ$), le champ électrique ne possède pas de composante E_z ce qui explique que ce pic n'apparaisse pas. La géométrie du nanofil, qui possède une longueur supérieure au diamètre, ne permet l'apparition que d'un seul mode transverse contrairement aux modes longitudinaux

Type	Énergie FDTD (eV)	Énergie EELS (eV)	Écart
Longitudinal	0,70	0,80	13%
	1,15	1,26	9 %
	1,50	1,60	6 %
Transversal	2,53	2,4	5%

TABLE 4.2 – Comparaison des énergie de résonances trouvées par ADE-FDTD et mesure EELS pour un fil de longueur $L = 120$ nm et diamètre $D = 10$ nm.

qui peuvent être multiples.

Le tableau 4.2 présente une comparaison des énergies de résonances trouvées par la méthode numérique FDTD et les mesures EELS pour le fil de longueur $L = 120$ nm et $D = 10$ nm. Les énergies de résonance trouvées sont du même ordre de grandeur, avec un écart qui reste inférieur à 13%.

Pour chaque énergie de résonance trouvée par la méthode FDTD, nous présentons le rapport E/E_0 dans le plan (xz) passant par le centre du fil (figure 4.12). Les cartes à 0,68 eV et 1,50 eV sont issues du calcul où $\theta = 0^\circ$ alors que celles à 1,15 eV et 2,53 eV sont issues du calcul où $\theta = 45^\circ$. Par analogie avec le champ électromagnétique émis par un dipôle oscillant, la résonance à 0,68 eV correspond à une résonance dipolaire. Les autres énergies correspondent à des résonances d'ordre supérieur. La figure 4.12 nous permet de confirmer que l'énergie de résonance à 2,4 eV correspond à un mode transverse puisque l'intensité du champ électromagnétique est uniforme le long du fil. La comparaison de ces cartes avec celles obtenues par EELS figure 4.7 n'est pas immédiate : dans un cas on observe l'augmentation du champ électrique à une énergie donnée et dans l'autre le nombre d'électrons ayant perdu une énergie donnée. Alors que l'augmentation de champ électrique est maximum à l'extérieur de la nanoparticule, le nombre d'électrons ayant perdu une énergie donnée est maximum à l'intérieur de la nanoparticule. Cependant des similitudes apparaissent : la première énergie de résonance montre un comportement de type dipolaire et plus l'énergie de résonance augmente plus le nombre de maximas à l'intérieur du fil est élevé. Le rapport E/E_0 à l'intérieur du fil le long de l'axe x passant par le centre de masse du fil pour $\theta = 45^\circ$ est tracé figure 4.13. L'énergie de résonance à 0,68 eV présente

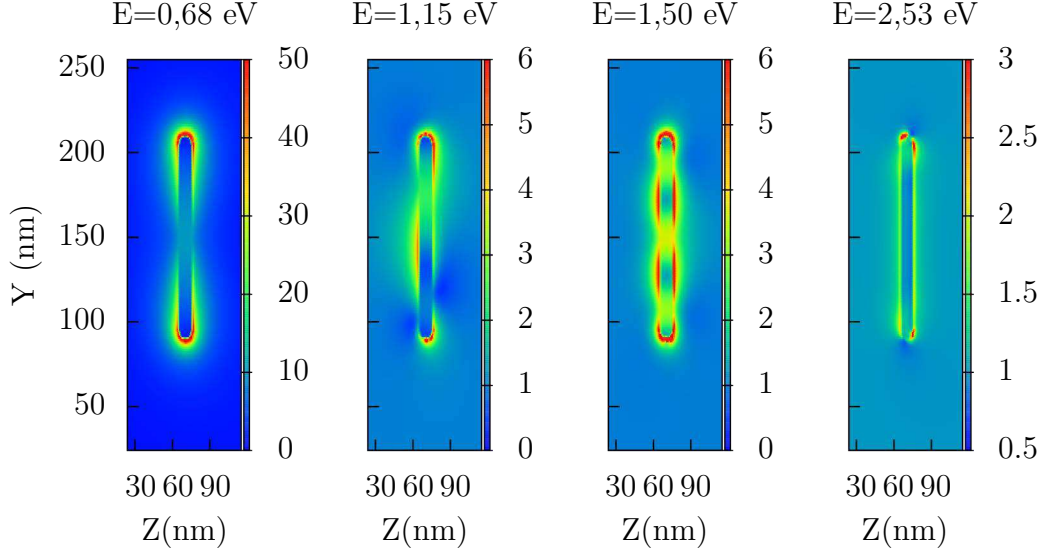


FIGURE 4.12 – Carte 2D du rapport E/E_0 d'un nanofil d'or de rapport d'aspect $R = 12$ obtenue par ADE-FDTD.

un ventre, celle à 1,15 eV deux ventres et celle à 1,50 eV trois ventres. La différence d'amplitude des ventres est due à l'angle θ de l'onde incidente.

L'ensemble des résultats obtenus par ADE-FDTD est comparé aux mesures effectuées par EELS dans la figure 4.14 où la longueur d'onde de résonance λ est tracée en fonction du rapport d'aspect R pour un volume $V_0 = 1,15 \cdot 10^{-23} \text{ m}^3$ fixé. Nous attribuons un indice m à chaque mode de résonance longitudinal, où $m = 1$ correspond à l'énergie de résonance la plus faible (dipolaire), $m = 2$ à l'énergie de résonance supérieure... Pour un mode m donné, l'évolution de λ en fonction de R suit une loi affine. Le nombre de modes observables est fonction du rapport d'aspect. Pour la sphère ($R = 1$), un seul mode est observable alors que pour un nanofil de rapport d'aspect $R = 15$ il y a 5 modes observables par simulation.

Les mesures faites par EELS sont cohérentes avec les simulations FDTD. Nous remarquons que pour un rapport d'aspect R élevé dans le cas des modes $m = 1$ et $m = 2$, une différence apparaît entre la simulation et l'expérience.

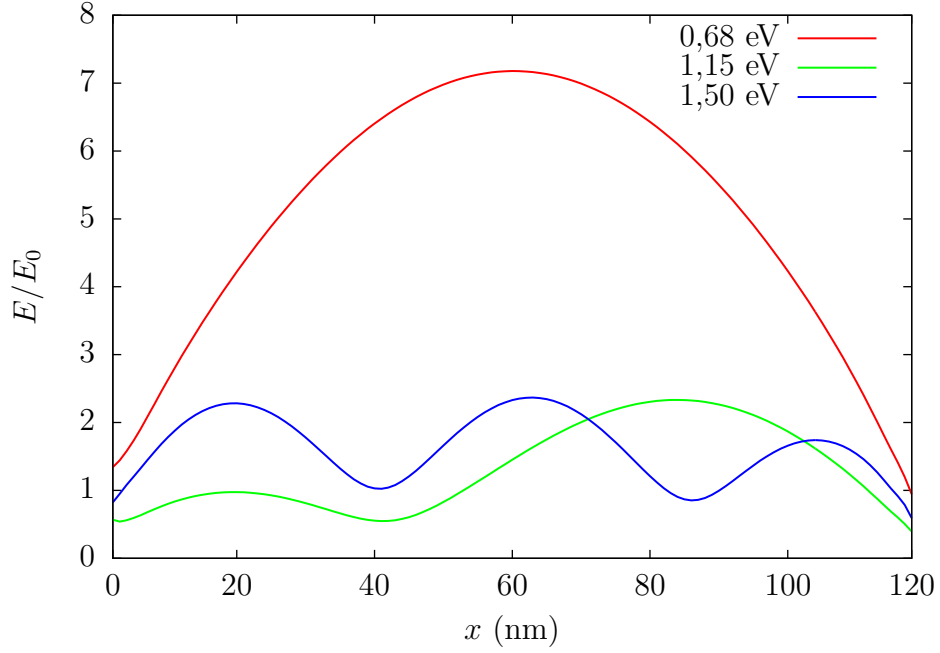


FIGURE 4.13 – Rapport E/E_0 à l'intérieur du fil le long de l'axe x passant par le centre de masse du fil pour $\theta = 45^\circ$.

Les hypothèses suivantes peuvent expliquer cet écart :

- La forme géométrique de la particule fabriquée expérimentalement peut différer de celle modélisée par ADE-FDTD. Sur l'image HAADF (figure 4.7) nous observons que les extrémités du fil ne sont pas exactement des demi-sphères. Les énergies de résonance étant fortement dépendantes de la forme de la particule, il est certain que cela peut avoir une influence.
- L'indice de l'or modélisé est issu des tables de Johnson et Christy [109] qui est différent de l'indice de l'or expérimental.
- Nous modélisons un indice statique de la matrice de silice ($n = 1,45$) alors que celui-ci varie sur la plage d'énergie considérée. Des mesures ont montré que sur la plage 0,5 eV à 3 eV l'indice varie de 1,43 à 1,47.

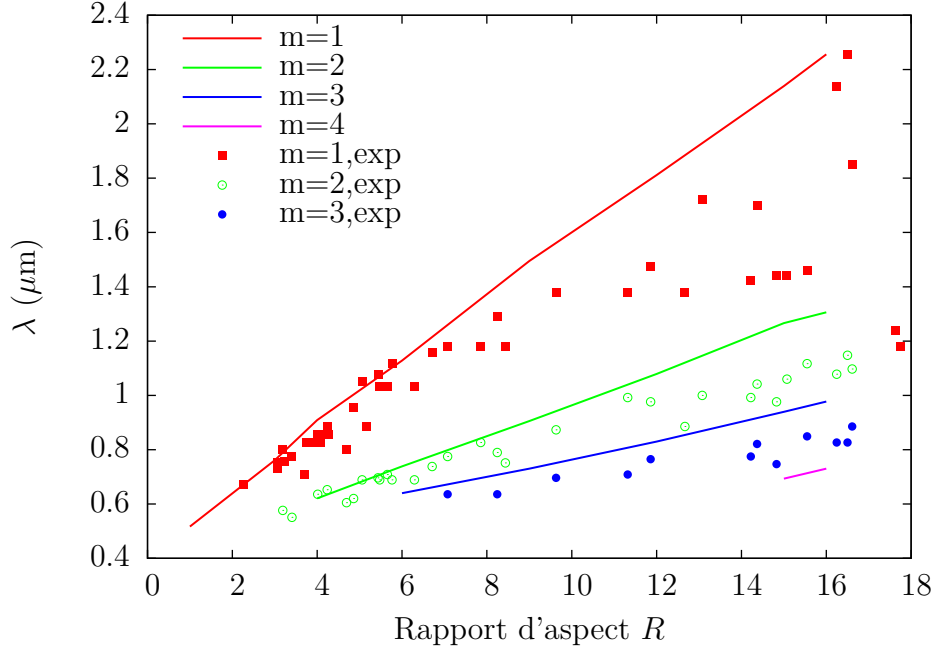


FIGURE 4.14 – Evolution de la longueur d'onde de résonance λ en fonction du rapport d'aspect R pour un volume $V_0 = 1,15 \cdot 10^{-23} \text{ m}^3$ fixé.

Relation de dispersion

Un nanofil d'or se comporte comme un résonateur Fabry-Pérot dont la condition de résonance sur la phase est donnée par l'équation suivante [149–151] :

$$\beta L + \phi = m\pi \quad (4.2)$$

où β est la constante de propagation (c'est-à-dire la projection du vecteur d'onde k selon l'axe x), ϕ est un terme de phase global représentatif de tous les déphasages induits par les réflexions aux extrémités du nanofil et par des éventuels objets déphasants sur le chemin optique et $m = 1, 2, 3, \dots$ l'ordre de résonance. La notion d'indice effectif rend compte du fait qu'une onde qui se propagerait dans le vide avec une constante k_0 , se propage dans le fil avec une constante β . L'indice effectif est alors défini par :

$$n_{eff} = \frac{\beta}{k_0} \quad (4.3)$$

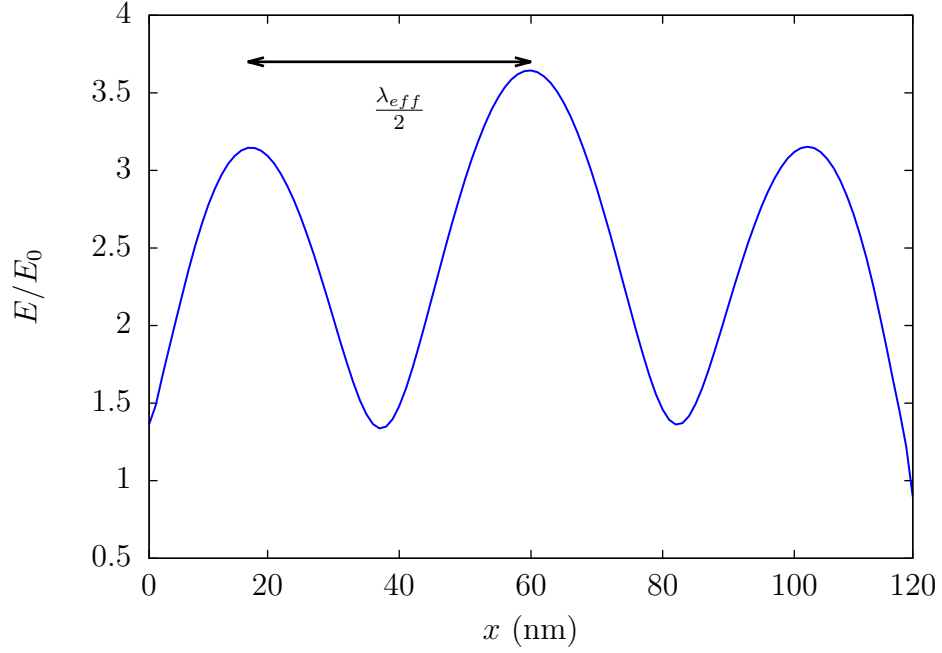


FIGURE 4.15 – Définition de la longueur d'onde effective λ_{eff} dans le cas d'un fil de longueur $L = 120$ nm pour $m = 3$.

Nous pouvons donc exprimer β par :

$$\beta = n_{eff}k_0 = \frac{2\pi n_{eff}}{\lambda} \quad (4.4)$$

En introduisant la longueur d'onde effective $\lambda_{eff} = \frac{\lambda}{n_{eff}}$ nous avons :

$$\beta = \frac{2\pi}{\lambda_{eff}} \quad (4.5)$$

En mesurant la longueur d'onde λ_{eff} de l'onde stationnaire à l'intérieur du nanofil nous pouvons alors connaître la constante de propagation β . Cela nous permet de tracer la relation de dispersion entre l'énergie de résonance et la constante de propagation β . Le rapport E/E_0 à l'intérieur du nanofil de 120 nm est représenté figure 4.15 en fonction de l'axe x du nanofil. Entre deux ventres nous mesurons $\lambda_{eff}/2$ car le rapport E/E_0 est toujours positif, puisqu'il est déterminé par la racine carrée de l'amplitude de chaque

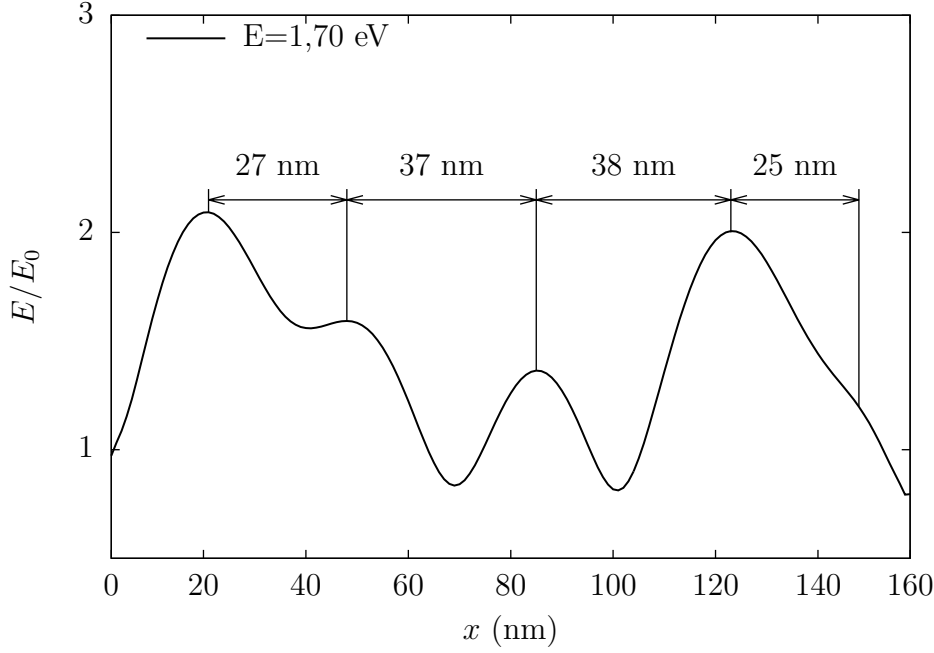


FIGURE 4.16 – Exemple de la différence entre la distance entre 2 ventres situés au centre du fil, et deux ventres situés aux extrémités.

composante :

$$\frac{E}{E_0} = \frac{\sqrt{E_x^2 + E_y^2 + E_z^2}}{\sqrt{E_{x0}^2 + E_{y0}^2 + E_{z0}^2}} \quad (4.6)$$

Nous avons constaté que la distance entre deux ventres peut être différente lorsqu'on la mesure au centre du fil ou aux extrémités. Par exemple, pour un fil avec une longueur plus importante ($L = 160$ nm et $D = 10$ nm), nous avons détecté 5 énergies de résonance longitudinales. Le rapport E/E_0 à l'intérieur du fil pour la 5^e énergie de résonance, à 1,70 eV, est représenté sur la figure 4.16. La distance entre deux ventres centraux est quasiment identique (37 et 38 nm) alors que les distances aux extrémités sont plus courtes (27 et 25 nm). Ce phénomène n'est pas prévu dans le cas du modèle de Fabry-Pérot classique et a déjà été observé expérimentalement [149, 152]. En effet les distances entre deux ventres situés aux extrémités du nanofil peuvent être plus courtes à cause d'un effet de bord. Pour calculer la constante de propagation β nous choisissons donc de relever la distance entre deux ventres

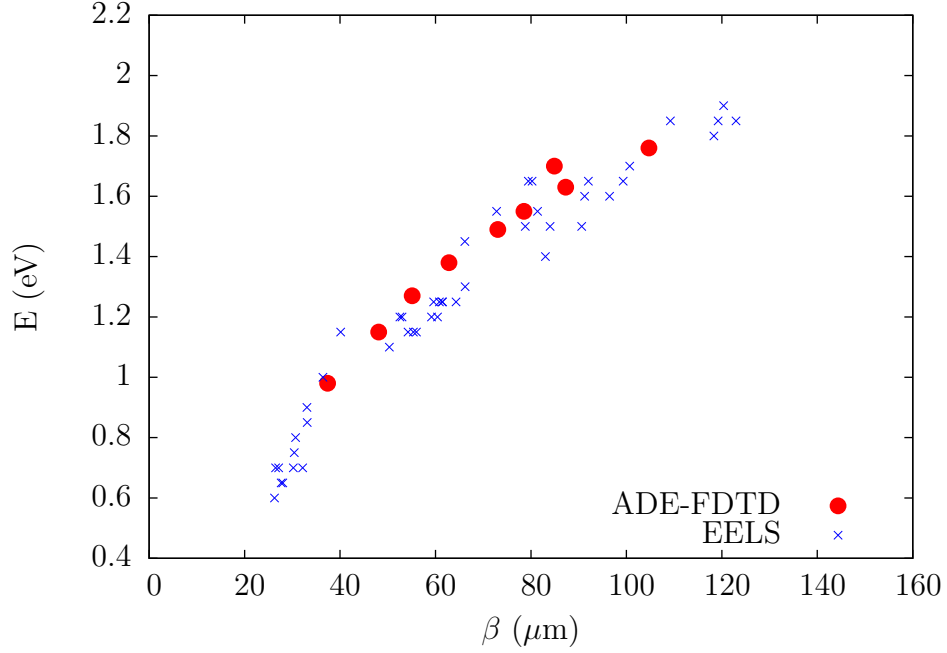


FIGURE 4.17 – Comparaison de la dispersion trouvée par la méthode ADE-FDTD et par les mesures EELS pour un fil de rayon 5 nm.

situés au centre du fil.

Dans le cas des mesures faites par EELS, la constante de propagation β peut être calculée, en première approximation, en posant $\phi = 0$. Dans ce cas, d'après la relation (4.2), la relation entre β et la longueur du fil est donnée par :

$$\beta = \frac{m\pi}{L} \quad (4.7)$$

où m est un entier qui définit l'ordre de résonance ; $m = 1$ pour la première énergie de résonance, $m = 2$ pour la seconde énergie de résonance... La relation de dispersion trouvée par mesure EELS et par la méthode ADE-FDTD pour un fil de rayon 5 nm est présentée figure 4.17. Les différents points sont obtenus en analysant plusieurs longueurs de fils possédant un rayon $\rho_0 = 5$ nm. L'accord trouvé entre les deux approches est très satisfaisant.

4.1.3 Vérification par un modèle analytique

Nous cherchons dans cette partie à valider la courbe de dispersion trouvée par EELS et ADE-FDTD par un modèle analytique. Ce modèle permet de trouver les solutions possibles à la propagation de modes dans des structures à symétrie cylindrique ayant une longueur infinie. La comparaison est effectuée entre des nanofils et des cylindres infinis possédant un même rayon $\rho_0 = 5$ nm

Nous considérons un cylindre de permittivité complexe ε_1 , de perméabilité μ_0 et de rayon ρ_0 inclus dans une matrice de permittivité ε_2 et de perméabilité μ_0 (figure 4.18). L'axe du cylindre est choisi selon l'axe x .

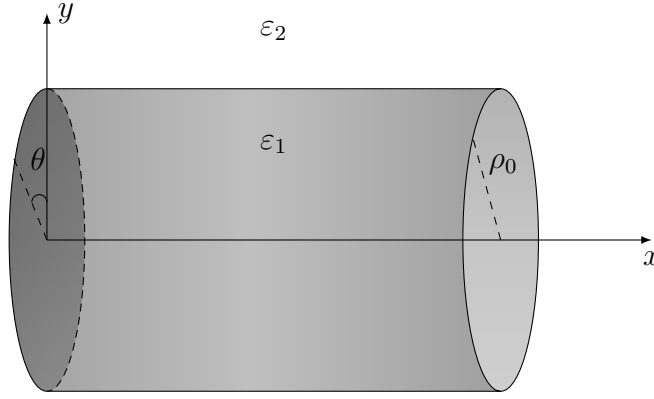


FIGURE 4.18 – Schéma d'un cylindre de rayon ρ_0 et de permittivité ε_1 ayant une longueur infinie suivant l'axe x .

L'équation de dispersion d'un cylindre infini, démontrée dans l'ouvrage de J.A. Stratton [85], s'écrit avec des fonctions de Bessel de première espèces J et Hankel du premier type H d'ordre p :

$$\left[\frac{1}{v} \frac{H'_p(v)}{H_p(v)} - \frac{1}{u} \frac{J'_p(u)}{J_p(u)} \right] \left[\frac{k_2^2}{v} \frac{H'_p(v)}{H_p(v)} - \frac{k_1^2}{u} \frac{J'_p(u)}{J_p(u)} \right] - p^2 \beta^2 \left(\frac{1}{u^2} - \frac{1}{v^2} \right)^2 = 0 \quad (4.8)$$

où l'on a défini $u = \kappa_1 \rho_0$ et $v = \kappa_2 \rho_0$ et où $\kappa_i^2 = k_i^2 - \beta^2$ ($i = 1, 2$) avec β la projection du vecteur d'onde k_i selon l'axe x . L'équation 4.8 permet de trouver les modes transverse électrique (TE), transverse magnétique (TM) et transverse électromagnétique (TEM). Les modes TM sont caractérisés par

un champ magnétique qui est perpendiculaire à l'axe du cylindre. Pour les modes TE c'est le champ électrique qui est perpendiculaire à l'axe du cylindre. Pour $p = 0$ l'équation (4.8) se divise en deux équations indépendantes qui définissent les modes TE et TM : les modes TM obéissent à l'équation suivante [153] :

$$\left[\frac{k_2^2}{v} \frac{H'_0(v)}{H_0(v)} - \frac{k_1^2}{u} \frac{J'_0(u)}{J_0(u)} \right] = 0 \quad (4.9)$$

Tandis que l'autre équation permet de trouver les modes TE [153] :

$$\left[\frac{1}{v} \frac{H'_0(v)}{H_0(v)} - \frac{1}{u} \frac{J'_0(u)}{J_0(u)} \right] = 0 \quad (4.10)$$

Par la suite nous restreignons notre étude aux seuls modes TM afin de comparer cette étude analytique aux calculs effectués par simulation où le champ magnétique \vec{H} est toujours perpendiculaire à l'axe du cylindre. La résolution de l'équation 4.10 nous permet de tracer la relation de dispersion des modes supportés par le cylindre, c'est-à-dire l'énergie E en fonction de la constante de propagation β . L'énergie E est définie en fonction du vecteur d'onde $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ dans le vide par $E = \hbar k_0 c$. Une comparaison de la relation de dispersion entre un modèle analytique d'un cylindre infiniment long de rayon $\rho = 5$ nm (mode TM), les mesures EELS et les résultats obtenus par ADE-FDTD pour des nanofils de même rayon ρ_0 est présentée figure 4.19. Un excellent accord est obtenu entre les trois approches.

4.2 Nanoparticules d'or en réseau

Après avoir étudié différentes nanoparticules d'or individuelles, nous avons commencé à travailler sur les propriétés optiques d'un réseau de nanoparticules. Comme nous l'avons présenté dans le chapitre 1, un réseau de nanoparticules d'or peut permettre d'obtenir une résonance Fano. D'un point de vue optique cela peut être intéressant car la section efficace d'extinction peut-être fortement modifiée sur une plage spectrale réduite.

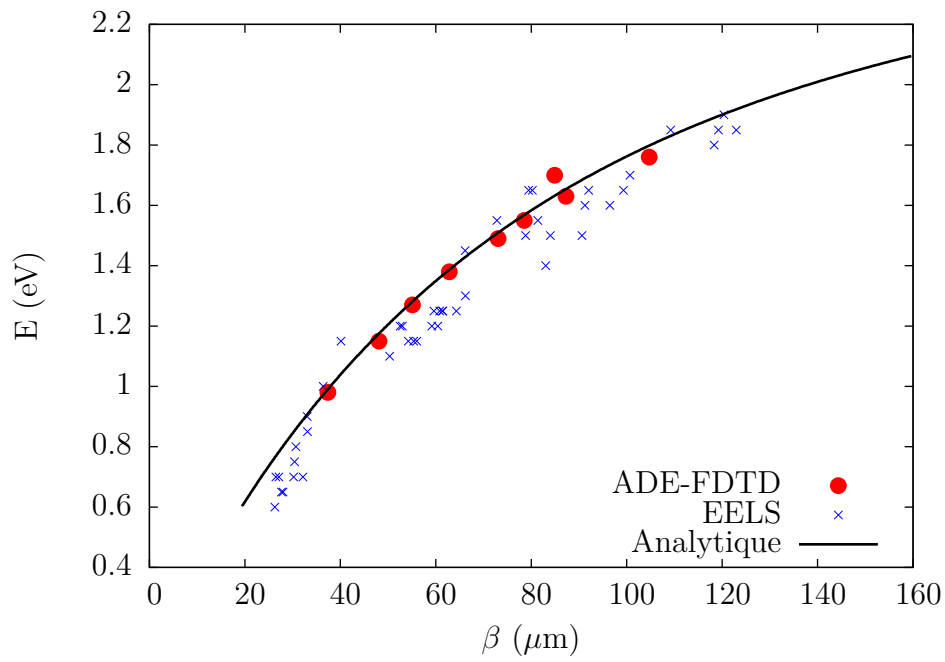


FIGURE 4.19 – Comparaison de la relation de dispersion entre un modèle analytique d'un cylindre infiniment long de rayon $\rho = 5 \text{ nm}$ (mode TM), les mesures EELS et les résultats obtenus par ADE-FDTD pour des nanofils de même rayon ρ_0 .

4.2.1 Expérience

Par la technique de nanolithographie présentée paragraphe 4.1.1 un réseau de nanoparticules d'or sphériques a pu être fabriqué. Ce réseau est caractérisé par le pas de réseau h qui est la distance centre à centre entre deux sphères (figure 4.20).

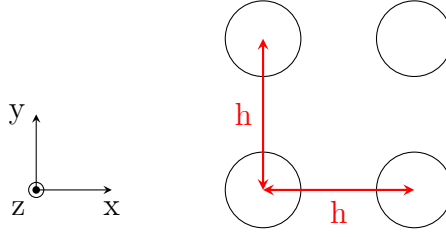


FIGURE 4.20 – Définition du pas du réseau h pour un réseau de sphères.

Plusieurs échantillons ont été produits contenant des sphères de diamètres allant de 20 nm à 80 nm et un pas de réseau fixe $h = 100$ nm. Pour chacun de ces échantillons des mesures ont été effectuées par spectrophotométrie de transmission qui permettent d'avoir accès à l'absorbance A du réseau de nanoparticules qui est définie par :

$$A = \log \left(\frac{1}{T_{SiO_2 + Au_{np}}} \right) - \log \left(\frac{1}{T_{SiO_2}} \right) \quad (4.11)$$

où $T_{SiO_2 + Au_{np}}$ et T_{SiO_2} sont respectivement la transmission d'un échantillon de silice contenant des nanoparticules d'or et d'un échantillon de silice pure de même épaisseur d . L'absorbance A est reliée à la section efficace d'extinction σ_{ext} par la relation $A = \sigma_{ext} N d$ ou N est le nombre d'objets absorbants par unité de volume. Le résultat des mesures d'absorbance en fonction de la longueur d'onde incidente est présenté figure 4.21. Nous retrouvons le pic caractéristique d'une sphère isolée, qui se déplace en fonction du diamètre de la sphère, mais il n'est pas possible d'identifier une influence du réseau. Pour ne pas fabriquer de multiples échantillons sans connaître les paramètres idéaux pour observer une résonance Fano nous avons cherché à modéliser un tel réseau de nanosphères d'or.

Pour comparer des résultats numériques aux résultats expérimentaux

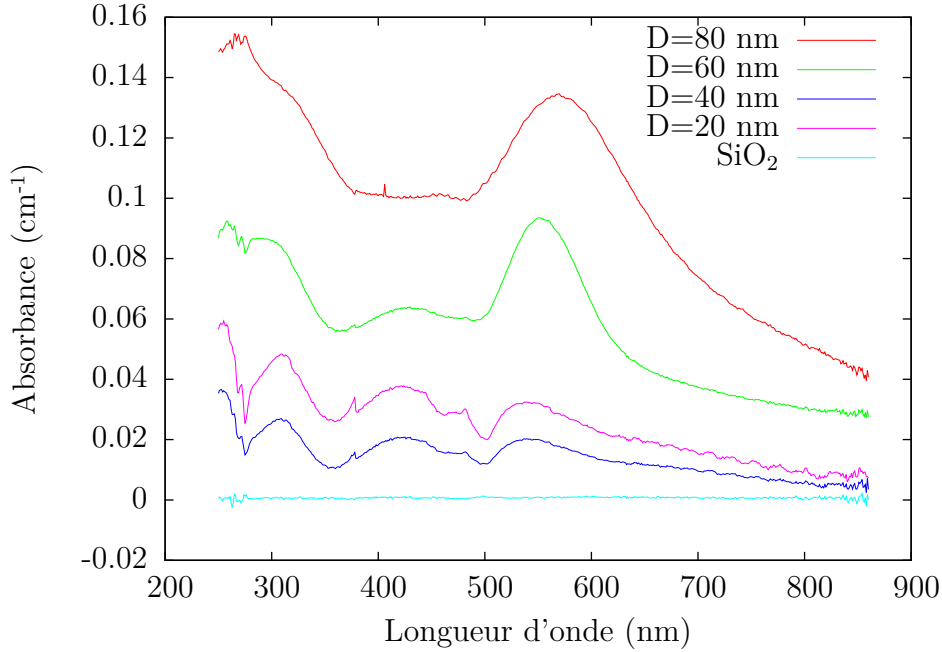


FIGURE 4.21 – Absorbance en fonction de la longueur d'onde incidente pour différents diamètres de sphères dans un réseau avec un pas $h = 100$ nm.

d'absorbance, il est nécessaire de connaître des grandeurs en champ lointain comme les sections efficaces d'absorption de diffusion et d'extinction. Pour des raisons d'espace mémoire et de temps de calcul, il n'est pas possible d'avoir un domaine de calcul suffisamment grand pour connaître ces grandeurs en champ lointain. L'utilisation des fonctions de Green [138] ou l'application du théorème des courants équivalents de surface [1, 154, 155] permet d'effectuer une transformation champ proche/champ lointain dans la méthode ADE-FDTD. De plus, la modélisation d'un réseau de nanoparticules, contenant un grand nombre d'objets (>10) nous oblige à développer des conditions aux limites périodiques pour réduire l'espace mémoire. L'implémentation de ces deux techniques, transformation champ proche/champ lointain et les conditions aux limites périodiques, dans le code de calcul est longue à mettre en œuvre et nous avons fait le choix, pour des raisons d'efficacité, d'utiliser une méthode opérationnelle et disponible dans la littérature.

4.2.2 Étude par la méthode DDA

La méthode DDA qui signifie *discrete dipole approximation* en anglais, ou encore approximation dipolaire discrète en français, est adaptée au calcul de grandeurs en champ lointain. Nous avons utilisé le code DDSCAT, disponible sur internet sous licence GNU General Public License, qui est développé depuis plus de 20 ans par Bruce T. Draine and P. J. Flatau [156].

Présentation de la méthode DDA

L'approximation dipolaire discrète (DDA) consiste à approximer un objet diffusant par un ensemble de N dipôles électriques rayonnants. Ces N dipôles sont excités par le champ électrique incident ainsi que le rayonnement des $N-1$ dipôles voisins. La connaissance du rayonnement de chaque dipôle amène à un système d'équations couplées permettant de déterminer la polarisation de N dipôles. La méthode DDA est adaptée pour modéliser des objets de taille inférieure ou égale à la longueur d'onde incidente. Cette méthode a été utilisée la première fois par H. De Voe [157, 158] en 1964 pour l'étude d'un agrégat moléculaire d'une taille très inférieure à la longueur d'onde. Depuis, de nombreux développements, comme la prise en compte des effets de retards [159], la technique de la transformée de Fourier rapide [160], la prise en compte du champ électromagnétique du dipôle rayonné sur lui même [82] ou encore l'application de conditions aux limites périodiques [161] ont permis de rendre cette méthode adaptable à plusieurs types de problèmes physiques.

Le principe de la méthode DDA consiste à exprimer le lien entre la polarisation \vec{P}_j d'un dipôle j et le champ électrique \vec{E}_j au point de coordonnées \vec{r}_j par la polarisabilité α_j :

$$\vec{P}_j = \alpha_j \vec{E}_j \quad (4.12)$$

Cet ensemble de dipôles est excité par un champ électrique incident, connu à la position \vec{r}_j , et exprimé par

$$E_{inc,j} = E_0 \exp i (\vec{k} \vec{r}_j - \omega t) \quad (4.13)$$

où \vec{k} est le vecteur d'onde ($k = \frac{2\pi}{\lambda}$), ω la pulsation et E_0 l'amplitude. Le

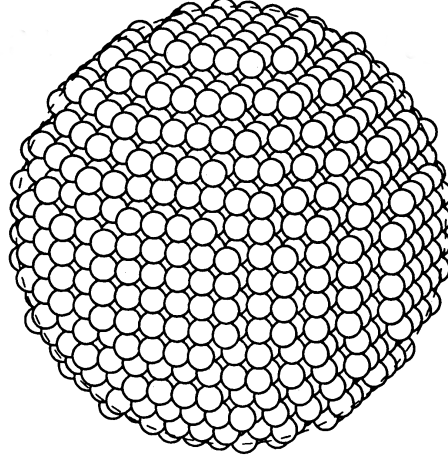


FIGURE 4.22 – Exemple de la discrétisation d'une sphère par un ensemble de 2320 dipôles où chaque boule représente un dipôle. Figure extraite de [82].

champ \vec{E}_j est la somme du champ électrique incident $\vec{E}_{inc,j}$ et des champs électriques rayonnés par les $N - 1$ dipôles voisins. On introduit le terme de dépolarisation $-A_{jk}\vec{P}_k$ qui correspond au champ électrique au point \vec{r}_j dû à tous les dipôles \vec{P}_k situés en \vec{r}_k pour $k \neq j$. Le champ \vec{E}_j s'écrit alors :

$$\vec{E}_j = \vec{E}_{inc,j} - \sum_{k \neq j} A_{jk} \vec{P}_k \quad (4.14)$$

A_{jk} est une matrice 3x3, dont l'expression ne sera pas présentée ici mais pourra être trouvée dans la littérature [156]. Il est possible de réécrire l'équation (4.14), en considérant que $A_{jj} = \alpha_j^{-1}$, sous la forme de N équations vectorielles :

$$\sum_{k=1}^N A_{jk} \vec{P}_k = \vec{E}_{inc,k} \quad (4.15)$$

L'objectif est maintenant de déterminer la polarisation \vec{P}_k pour tous les indices k ce qui permet d'accéder aux différentes sections efficaces comme par exemple la section efficace d'extinction :

$$C_{ext} = \frac{K}{\epsilon_0 E_0^2} \sum_{j=1}^N \text{Im} \left(\vec{E}_{inc,j} \cdot \vec{P}_j \right) \quad (4.16)$$

Les expressions des sections efficaces d'absorption et de diffusion ne sont pas présentées dans ce document mais pourront être trouvées dans la littérature [82].

Le code de calcul DDSCAT ne donne pas accès à la section efficace mais à l'efficacité qui est définie comme le rapport entre la section efficace et la section géométrique πa_{eff}^2 où a_{eff} est le rayon effectif. En fixant le volume de la particule V , le rayon effectif a_{eff} correspond au rayon d'une sphère de même volume V :

$$a_{eff} = \sqrt[3]{\frac{3V}{4\pi}} \quad (4.17)$$

En connaissant ce rayon effectif il est possible de définir l'efficacité d'extinction qui est un nombre sans dimensions :

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{\pi a_{eff}^2} \quad (4.18)$$

Sphère de 30 nm de diamètre

Nous modélisons un réseau de nanosphères d'or de diamètre 30 nm dans une matrice de silice d'indice statique 1,46. L'efficacité d'extinction est présentée dans la figure 4.23 pour une sphère d'or de 30 nm seule puis au sein d'un réseau carré 2D dont le pas varie entre 100 nm et 400 nm. Pour la sphère seule l'efficacité d'extinction est maximale à 2.3 eV (540 nm), résultat conforme à la littérature [162]. Cette valeur ne change pas lorsque la particule est en réseau, quelque soit le pas de réseau.

L'efficacité d'extinction est toujours du même ordre de grandeur entre la particule isolée et la particule mise en réseau, et ce pour n'importe quel pas de réseau. S. Zou [99] propose un modèle simple pour calculer le rayon minimum r_{min} afin d'avoir une résonance Fano. Ce modèle se base sur une chaîne infinie 1D de sphères de nanoparticules sphériques. La permittivité complexe du métal est décrite par la modèle de Drude, donc avec une pulsation plasma ω_p et un terme d'amortissement γ . S. Zou montre que le rayon r_{min} de la

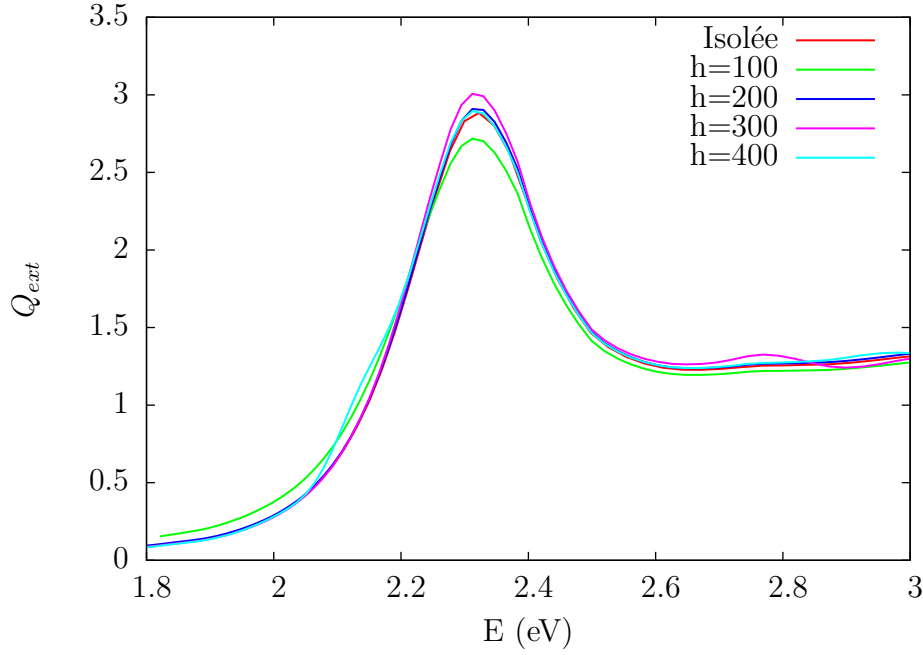


FIGURE 4.23 – Efficacité d’extinction en fonction de l’énergie pour un réseau de nanoparticules d’or de diamètre 30 nm espacée d’un pas h (en nm)

nanoparticule obéit à l’équation suivante :

$$r_{min} \geq \left(\frac{\lambda_{ie}}{2\pi} \right) \left(\frac{2\gamma}{\omega_p} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.19)$$

où λ_{ie} est la longueur d’onde de seuil des effets interbandes, c’est-à-dire 620 nm dans le cas de l’or [163]. Avec les paramètres de Drude présentés dans le chapitre 2, $\omega_p = 1,35 \cdot 10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$ et $\gamma = 1,08 \cdot 10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$ nous trouvons $r_{min} = 25 \text{ nm}$. Ce rayon n’est qu’une estimation valable dans le cadre du modèle de Drude et pour le cas de la chaîne infinie en 1D. Nous avons constaté qu’il n’y avait pas de résonance Fano identifiable pour des sphères d’or avec un rayon inférieur à 40 nm.

Sphère de 100 nm de diamètre

L’efficacité d’extinction est présentée en fonction de l’énergie pour une sphère de 100 nm de diamètre, seule puis incluse dans un réseau, sur la figure

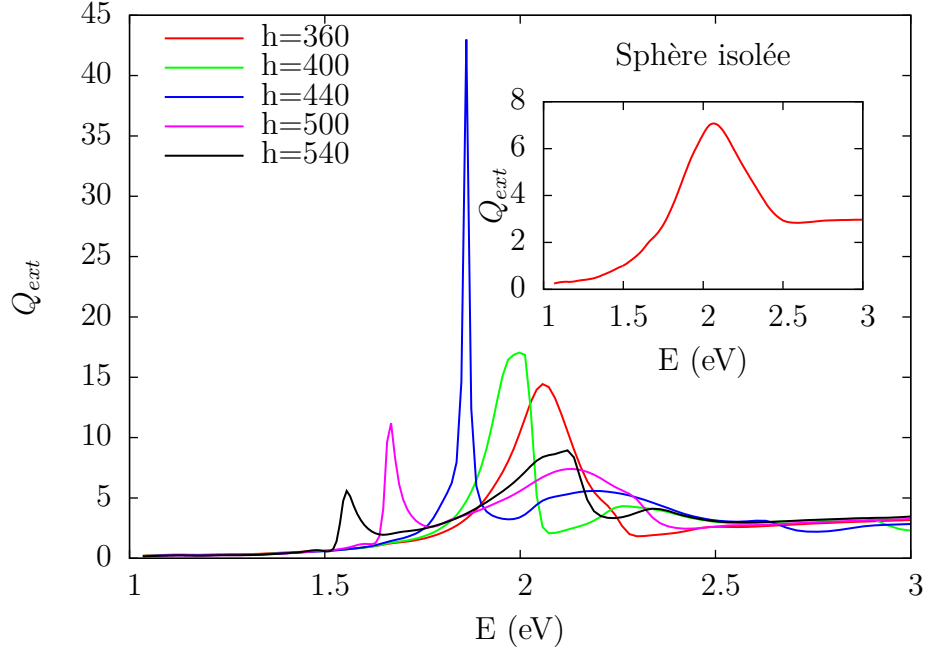


FIGURE 4.24 – Efficacité d’extinction en fonction de l’énergie pour un réseau de nanoparticules d’or de diamètre 100 nm espacée d’un pas h (en nm)

4.24. Pour une particule isolée l’efficacité d’extinction est maximale pour une énergie de 2,1 eV et vaut 7,1. Cette même particule placée au sein d’un réseau carré de pas $h=360$ nm conduit à une efficacité double (14). Cependant pour ce pas de réseau il n’est pas possible d’observer une fine bande présentant un profil asymétrique. Lorsque le pas du réseau augmente à 400 nm nous observons une augmentation de l’efficacité d’extinction à 17 autour d’une énergie de 2 eV. Le profil de ce pic est fortement asymétrique. Pour un pas de réseau de 440 nm nous pouvons identifier à 1,8 eV un pic présentant une efficacité d’extinction élevée de 43. Ce pic a les caractéristiques d’une résonance Fano puisqu’il est fin avec un profil asymétrique [90]. Enfin pour un pas de réseau plus important (500 et 540 nm), le pic Fano se déplace vers les basses énergies et son amplitude décroît fortement.

D’autres types d’objets en réseau, issus de l’irradiation par ions lourds, devraient être étudiés. Ce travail est préliminaire à la fabrication d’échantillons afin de déterminer le pas de réseau idéal pour chaque type d’objets. Par la

suite une comparaison entre les résultats expérimentaux par spectrométrie d'absorption et les résultats par modélisation pourra être réalisée. A terme, l'idéal serait d'implémenter dans le code ADE-FDTD existant les conditions aux limites périodiques ainsi que la transformation champ proche/champ lointain. Cela permettra de prendre en compte une interface substrat/réseau de nanoparticules qui est susceptible de modifier la réponse optique d'un réseau de nanoparticules [164]. En effet, le code DDSCAT ne permet pas d'introduire une interface substrat/réseau de nanoparticules.

4.3 Bilan du chapitre

Nous avons étudié, dans ce quatrième chapitre, des nanoparticules d'or individuelles (4.1) de différentes formes fabriquées par nanolithographie puis irradiées par ions lourds. La modification de la forme de nanosphères d'or s'effectue à volume constant, ce qui nous a amené à définir le rapport d'aspect qui est la longueur de la particule divisée par son diamètre. L'étude de ces nanoparticules par EELS a déterminé leurs énergies de résonance et un graphique de synthèse présentant l'énergie de résonance en fonction du rapport d'aspect a été présenté. L'étude numérique de ces particules par la méthode ADE-FDTD a également permis de trouver des énergies de résonance qui se sont révélées être en accord avec les mesures EELS. Grâce à la connaissance de la répartition du champ électromagnétique à l'intérieur d'un nanofil, nous avons déterminé la constante de propagation β . Cela nous a conduit à tracer la relation de dispersion qui s'est révélée être en accord avec celle obtenue par mesure EELS. Finalement à l'aide d'un modèle analytique, permettant de connaître la relation de dispersion d'un cylindre infini, nous avons pu valider les trois approches : numérique, expérimentale et analytique.

Nous avons aussi présenté dans ce chapitre, l'étude d'un réseau de nanoparticules d'or. L'objectif de cette partie était d'observer des résonances de type Fano. Des premières mesures expérimentales ont été faites mais sans détecter de résonance Fano. Cela nous a amené à utiliser un code de calcul (DDSCAT) afin de trouver pour chaque type d'objets le pas de réseau idéal pour observer ce type de résonance. Il reste maintenant à fabriquer les échan-

tillons et faire les mesures expérimentales pour vérifier les résultats obtenus par DDSCAT. Comme perspectives, l'implémentation de la transformation champ proche/champ lointain et les conditions aux limites périodiques dans le code ADE-FDTD pourra permettre de prendre en compte un substrat qui est susceptible de modifier la réponse optique du réseau de nanoparticules.

Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était la modélisation de l'interaction onde-matière dans des matériaux nanostructurés à base de terres rares ou de nanoparticules métalliques pour la photonique ou la plasmonique. Ce travail de recherche s'inscrivait dans une étude plus globale réalisée de manière expérimentale au laboratoire CIMAP (Centre de Recherche sur les ions les Matériaux et la Photonique) dans l'équipe NIMPH (Nanostructures Intégrées pour la Microélectronique et la Photonique) sur des milieux à gain à base de silice contenant des nanograins de silicium et des ions de terres rares (Er^{3+} ou Nd^{3+}). D'autre part, le développement de mes travaux dans le domaine de l'interaction onde-matière sur les objets nanostructurés d'or est venu également en complément d'études expérimentales faisant partie des nouveaux axes de recherche de l'équipe NIMPH du CIMAP.

Ces travaux de thèse ont permis de développer et mettre en œuvre la discrétisation des équations de Maxwell par la méthode de calcul des différences finies dans le domaine temporel (FDTD). Ce code de calcul a été développé en interne au laboratoire CIMAP et de nombreux développements ont été entrepris au cours de cette thèse notamment concernant la simulation d'une source de champ électromagnétique (onde plane) mais aussi concernant l'accès aux observables fondamentales dans ce domaine à savoir les amplitudes des champs électromagnétiques. Les milieux dispersifs ou à gain ont été modélisés grâce à l'ajout d'équations différentielles auxiliaires (ADE). L'étude des propriétés optiques des guides d'onde co-dopés avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares (Nd^{3+} ou Er^{3+}) et des nanoparticules d'or a ainsi pu être réalisée.

L'étude d'un guide d'onde co-dopé avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares (Nd^{3+} ou Er^{3+}) a requis le développement d'un nouvel algorithme pour réduire les temps de calcul. Des méthodes originales ont été développées comme la séparation entre des variables "lentes" et "rapides" et la superposition des polarisations afin de modéliser les sections efficaces tout en optimisant le temps de calcul pour atteindre le régime stationnaire. L'algorithme développé a fait l'objet d'une publication [127] car à notre connaissance aucun algorithme comparable n'existait dans la littérature. Cet algorithme nous a ensuite permis d'étudier l'intensité du champ électromagnétique à l'intérieur du guide d'onde pour les longueurs d'onde de la pompe (488 nm) et du signal (1064 nm pour Nd^{3+} ou 1532 nm pour Er^{3+}). Cela nous a permis de vérifier que le champ électromagnétique était bien guidé à l'intérieur de la couche active. Nous avons aussi tracé les cartes de populations à l'intérieur du guide. Pour le guide d'onde ng-Si: Er^{3+} nous avons trouvé que l'inversion de population de Er^{3+} était obtenue sur une longueur de seulement 1,5 μm alors que pour le guide d'onde ng-Si: Nd^{3+} elle est obtenue sur la longueur totale du guide modélisé (7 μm). Ces cartes de populations nous ont ensuite permis de calculer le gain brut : pour le guide d'onde ng-Si: Er^{3+} le gain brut est de 2 dB/cm alors que pour le guide d'onde ng-Si: Nd^{3+} il est de 30 dB/cm. Dans ce type de guides, les ions néodyme sont donc un meilleur dopant que l'erbium. Nous avons aussi montré que le pompage en co-propagation avec le signal ne permet pas d'exciter efficacement les populations sur l'ensemble du guide : sur une longueur de 7 μm l'intensité de la pompe est divisée par deux.

Par la suite, un pompage "par le haut" (*top-pumping*) pourra alors être étudié : celui-ci permet d'avoir une intensité de pompe uniforme sur la longueur du guide. Ce type de pompage peut-être mis en œuvre dans la méthode ADE-FDTD en utilisant une source dure avec un diaphragme. Les paramètres utilisés dans les simulations ont été extrait soit directement soit par calibration à partir de données expérimentales. A partir de ce travail, on peut maintenant envisager une étude détaillée du coefficient de couplage K dont peu de références sont disponibles dans la littérature. Cela permettrait une meilleure évaluation de ce coefficient pour le guide d'onde ng-Si: Nd^{3+}

L'étude de nanoparticules d'or individuelles par la méthode ADE-FDTD a permis de comparer les énergies de résonances avec celles obtenues par spectroscopie de pertes d'énergie (EELS). L'accord trouvé entre ces deux approches s'est révélé très bon. La connaissance en modélisation de la répartition du champ électromagnétique à l'intérieur d'un nanofil a permis de calculer la constante de propagation β . Nous avons observé que la distance entre deux ventres du champ électromagnétique à l'intérieur du nanofil n'était pas constante. Ce phénomène a déjà été reporté expérimentalement et il reste à en comprendre l'origine. Nous avons pu tracer la relation de dispersion, c'est-à-dire l'énergie de résonance en fonction de β pour un nanofil d'or avec un rayon $\rho_0 = 5$ nm. Les courbes de dispersion obtenues par ADE-FDTD et EELS se sont révélées être en accord. Enfin l'utilisation d'un modèle analytique a permis de tracer la relation de dispersion pour un cylindre infini de rayon $\rho_0 = 5$ nm montrant un accord avec les résultats obtenus par ADE-FDTD et EELS.

L'irradiation par ions lourds a récemment permis d'obtenir de nouvelles formes de particules. En particulier des nanoparticules d'or ayant une forme de "chromosome", c'est-à-dire un cœur avec quatre branches. Les premières mesures par EELS ont montré que les quatre branches possèdent leur propre énergie de résonance. Sur une même nanoparticule, l'excitation des quatre branches peut donc se faire séparément. La comparaison avec des résultats obtenus par la méthode ADE-FDTD serait intéressante et pourrait permettre de déterminer si les énergies de résonance différentes sont dues à la longueur de chaque branche qui n'est pas identique ou à un effet de la forme globale de la nanoparticule.

Pour finir nous avons aussi modélisé un réseau de nanoparticules d'or sphériques par la méthode DDA (*discrete dipole approximation*) afin de déterminer le meilleur pas de réseau pour mesurer une raie de type Fano sur la section efficace d'extinction. Il reste maintenant à réaliser les échantillons afin de comparer la section efficace d'extinction obtenue en modélisation à celle obtenue par spectrophotométrie de transmission. De nouvelles formes de d'objet, par exemple un réseau carré de nanofil d'or, pourront ensuite être étudiées. Un tel réseau pourrait permettre d'augmenter la finesse spec-

trale des résonances de type Fano tout en augmentant leur amplitude. Par la suite il pourrait être envisagé de développer dans le code ADE-FDTD la transformation champ proche/champ lointain et les conditions aux limites périodiques. Cela permettrait de prendre en compte le substrat qui peut modifier la réponse optique du réseau de nanoparticules.

Des travaux ont montré que la présence de nanoparticules métalliques (or ou argent) permettait d'augmenter la luminescence de nanograins de silicium [165,166]. Comme perspective réunissant les deux sujets développés au cours de cette thèse, la réalisation d'un guide d'onde contenant des nanoparticules d'or et des nanograins de silicium ou des ions de terres rares pourrait être envisagée. L'idée principale serait d'utiliser la résonance plasmonique des nanoparticules d'or pour augmenter l'amplitude du champ électromagnétique dans l'environnement des nanograins de silicium ou des ions terres rares. Les nanoparticules permettraient d'augmenter la durée de vie des photons dans la couche active mais elle serait aussi responsable d'une dissipation d'énergie sous forme de chaleur. Une étude permettrait alors de déterminer si une amplification du champ électromagnétique est réalisable.

Annexe A

Algorithme de Yee

La discrétisation des équations de Maxwell à l'ordre 2 dans le temps et l'espace permet de calculer l'évolution temporelle et spatiale d'un champ électromagnétique. Nous posons $x_i = i\Delta x$, $y_j = j\Delta y$, $z_k = k\Delta z$ et $t = n\Delta t$. L'évolution temporelle des composante du champ magnétique \vec{H} selon la cellule de Yee est déterminée par :

$$\begin{aligned} H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} = & H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} \\ & + \frac{\Delta t}{\mu} \left(\frac{E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k+1}^n - E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^n}{\Delta z} - \frac{E_z|_{i,j+1,k+\frac{1}{2}}^n - E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta y} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

$$\begin{aligned} H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} = & H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} \\ & + \frac{\Delta t}{\mu} \left(\frac{E_z|_{i+1,j,k+\frac{1}{2}}^n - E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta x} - \frac{E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k+1}^n - E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^n}{\Delta z} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

$$\begin{aligned}
H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^{n+\frac{1}{2}} &= H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^{n-\frac{1}{2}} \\
&+ \frac{\Delta t}{\mu} \left(\frac{E_x|_{i+\frac{1}{2},j+1,k}^n - E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^n}{\Delta y} - \frac{E_y|_{i+1,j+\frac{1}{2},k}^n - E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^n}{\Delta x} \right)
\end{aligned} \tag{A.3}$$

L'évolution temporelle des composantes du champ électrique \vec{E} selon la cellule de Yee est déterminée par :

$$\begin{aligned}
E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n+1} &= E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^n \\
&+ \frac{\Delta t}{\epsilon} \left(\frac{H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^n - H_z|_{i+\frac{1}{2},j-\frac{1}{2},k}^n}{\Delta y} - \frac{H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^n - H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k-\frac{1}{2}}^n}{\Delta z} \right)
\end{aligned} \tag{A.4}$$

$$\begin{aligned}
E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^{n+1} &= E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^n \\
&+ \frac{\Delta t}{\epsilon} \left(\frac{H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n - H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k-\frac{1}{2}}^n}{\Delta z} - \frac{H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^n - H_z|_{i-\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^n}{\Delta x} \right)
\end{aligned} \tag{A.5}$$

$$\begin{aligned}
E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n+1} &= E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n \\
&+ \frac{\Delta t}{\epsilon} \left(\frac{H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^n - H_y|_{i-\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta x} - \frac{H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n - H_x|_{i,j-\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^n}{\Delta y} \right)
\end{aligned} \tag{A.6}$$

Annexe B

Solution analytique des équations de populations

Dans le cas du guide d'onde dopé avec des nanograins de silicium et des ions néodymes, nous avons utilisé une résolution analytique des équations de populations. Dans le nouvel algorithme proposé les termes $\vec{E}(t)\frac{dP_{ij}(t)}{dt}$ ne dépendent plus du temps et sont remplacés par la moyenne courante à l'état stationnaire $\langle \vec{E}\frac{dP_{ij}}{dt} \rangle^{stat}$. De plus nous cherchons les solutions à l'état stationnaire, ce qui implique que pour chaque niveau de ng-Si et Nd³⁺ :

$$\frac{dN_i}{dt} = 0 \quad (\text{B.1})$$

Ainsi les équations (3.1), (3.2) peuvent se réécrire :

$$\begin{cases} 0 = + \langle \frac{1}{\hbar\omega_{Si_{10}}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{Si_{10}}}{dt} \rangle^{stat} - \frac{N_{Si_1}}{\tau_{Si_{10}}|_{nr}^r} - K N_{Si_1} N_0 \\ 0 = - \langle \frac{1}{\hbar\omega_{Si_{10}}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{Si_{10}}}{dt} \rangle^{stat} + \frac{N_{Si_1}}{\tau_{Si_{10}}|_{nr}^r} + K N_{Si_1} N_0 \end{cases} \quad (\text{B.2})$$

De même les équations (3.7) à (3.11) peuvent se réécrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} 0 = -\frac{N_4}{\tau_{43}|_{nr}} + KN_{Si_1}N_0 \\ 0 = + \left\langle \frac{1}{\hbar\omega_{30}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{30}}{dt} \right\rangle^{stat} + \left\langle \frac{1}{\hbar\omega_{31}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{31}}{dt} \right\rangle^{stat} + \frac{1}{\hbar\omega_{32}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{32}}{dt} \right\rangle^{stat} \\ \quad + \frac{N_4}{\tau_{43}|_{nr}} - \frac{N_3}{\tau_{30}|_{nr}} - \frac{N_3}{\tau_{31}|_{nr}} - \frac{N_3}{\tau_{32}|_{nr}} \\ 0 = - \left\langle \frac{1}{\hbar\omega_{32}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{32}}{dt} \right\rangle^{stat} + \frac{N_3}{\tau_{32}|_{nr}} - \frac{N_2}{\tau_{21}|_{nr}} \\ 0 = - \left\langle \frac{1}{\hbar\omega_{31}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{31}}{dt} \right\rangle^{stat} + \frac{N_3}{\tau_{31}|_{nr}} - \frac{N_1}{\tau_{10}|_{nr}} + \frac{N_2}{\tau_{21}|_{nr}} \\ 0 = - \left\langle \frac{1}{\hbar\omega_{30}} \vec{E} \frac{d\vec{P}_{30}}{dt} \right\rangle^{stat} + \frac{N_3}{\tau_{30}|_{nr}} + \frac{N_1}{\tau_{10}|_{nr}} - KN_{Si_1}N_0 \end{array} \right.$$

Pour simplifier ces équations nous utilisons ensuite la propriété de conservation de la concentration des nanograins de silicium, à savoir $N_{Si,tot} = N_{Si_1} + N_{Si_0}$. Nous cherchons ensuite à exprimer chaque niveau de population des ions néodyme en fonction du niveau de population N_{Si_1} des nanograins de silicium. Nous arrivons ainsi à 5 équations dépendantes de N_{Si_1} : $N_0(N_{Si_1})$, $N_1(N_{Si_1})$, $N_2(N_{Si_1})$, $N_3(N_{Si_1})$, $N_4(N_{Si_1})$. A partir de la conservation de la concentration des nanograins de silicium, $N_{tot} = N_0 + N_1 + N_2 + N_3 + N_4$ nous arrivons à une équation du second ordre du type :

$$AN_{Si_1}^2 + BN_{Si_1} + C = 0 \quad (B.3)$$

Il reste alors à déterminer les solutions de l'équation (B.3). Comme N_{Si_1} est forcément positif, cela permet d'exclure une des deux solutions. La détermination de N_{Si_1} permet ensuite de connaître les populations de chaque niveau du néodyme.

Table des figures

1.1	Levée de dégénérescence successive des niveaux de Er^{3+} . Extrait de [5].	10
1.2	Diagramme d'énergie de quelques ions terres rares. Les transitions radiatives les plus utilisées sont représentées. Figure adaptée de [6]	10
1.3	Niveaux d'énergies avec les principales transitions des ions erbium (a gauche) et des ions néodyme (à droite)	11
1.4	Pertes, en dB/km, de la silice. Le minimum se situe à environ 0,2 dB/cm pour une longueur d'onde de 1.55 μm . Extrait de [8].	12
1.5	Représentation schématique des différentes désexcitations non radiatives de l'erbium dans une matrice de silicium : (a) Transfert d'énergie inverse, (b) Relaxation de type Auger avec des électrons libres et (c) avec des trous libres. C et V sont respectivement la bande de conduction et de valence du silicium et E_f le niveau de Fermi. Adapté de [15].	14
1.6	Structure de bandes de 2 semiconducteurs à gap direct (InP) et à gap indirect (Si). Extrait de [29].	16
1.7	Spectre de luminescence du silicium poreux en fonction de la durée du traitement chimique. Extrait de [31].	17
1.8	Trois différents types de nanostructures de silicium. Puits quantique (2D), Fil quantique (1D) et boîte quantique (0D). Extrait de [5]	18

1.9	Effets du confinement quantique : Augmentation de l'énergie du gap et élargissement des fonctions d'ondes des porteurs de charges	19
1.10	Valeur du gap optique en fonction du diamètre des nanograins de silicium. Garrido et al [40], Wolkin et al [41], Kanemitsu et al [42], Kim et al [43], Ledoux et al [44]. Extrait de [45]	20
1.11	Schéma des différents type de transfert entre un donneur D et un accepteur A. Adapté de [57]	22
1.12	Représentation schématique des champs \vec{E} et \vec{H} se propageant le long d'une interface métal/diélectrique. Les oscillations de charges sont indiquées (+ et -) ainsi que la dépendance exponentielle de l'intensité du champ électromagnétique en fonction de la distance à l'interface (sur la droite).	28
1.13	La coupe de lycurgue sous deux éclairage différents : en réflexion (à gauche) et en transmission (à droite)	29
1.14	Schéma de l'interaction entre une nanoparticule métallique de rayon R et d'un champ électrique \vec{E}	30
1.15	Schéma d'une nanoparticule avec $R \ll \lambda$ ou la sphère est polarisée selon l'axe du champ (à gauche) et avec $R \approx \lambda$ où il y a apparition d'un mode quadrupolaire du à la variation spatiale du champ électrique (à droite).	34
1.16	Augmentation du champ local pour des modes dipolaire, quadrupolaire et octupolaire d'un nanosphère d'or de différents rayon R et différentes longueur d'onde λ . Extrait de [80]. . . .	34
1.17	Section efficace d'extinction d'une sphère d'or en fonction de son diamètre et de la longueur d'onde incidente. Extrait de [80].	35
1.18	Représentation du module $ c $ avec les paramètre $F/m = 1$, $\omega_0 = 10$ et $\Gamma = 1$	38
1.19	Amplitudes $ c_1 $ et $ c_2 $ des deux oscillateurs en fonction de la pulsation ω	39

2.1	Cellule de Yee montrant la disposition des composantes des champs électrique et magnétique. Les notations en transparence représente les composantes qui n'appartiennent pas à la cellule (i, j, k)	47
2.2	v_p/c en fonction de N_λ pour $S=0.5$	51
2.3	Schéma en deux dimensions de la zone de calcul, qui comprend la zone FDTD entourée de la zone PML elle-même entourée d'une couche où $\vec{E} = 0$ et $\vec{H} = 0$ (PEC).	53
2.4	Illustration de la décomposition et de l'absorption des champs dans la zone PML	55
2.5	Schéma de la localisation des conductivité électrique σ^e et magnétique σ^m dans un plan yz	55
2.6	Valeurs de l'indice optique n dans le section droite xy d'un guide d'onde	60
2.7	Composantes du champ magnétique \vec{H} d'un mode TE ($\beta = 19,2617 \mu\text{m}$) calculé par la méthode FDFD dans un guide d'onde dont le profil est présenté figure 3.1	60
2.8	Schéma en 1 dimension de la zone frontière gauche entre le champ diffusé et le champ total	62
2.9	Schéma de la grille de calcul en 2D et en 1D	64
2.10	Schéma représentant la zone de champ total et la zone de champ diffusé. Les coordonnées (i_0, j_0, k_0) correspondent au point commun entre le champ incident en une dimension et le champ incident calculé en trois dimensions. La direction de propagation est représentée par la flèche. La PML qui entoure la zone de champ totale n'est pas représentée	65
2.11	Direction et polarisation de l'onde incidente par rapport aux axes x, y, z	66
2.12	Composantes E_y du champ électrique dans un plan (x, y) passant au centre d'une sphère de diamètre 500 nm et d'indice $n = 2$ pour une onde incidente où $\theta = \frac{\pi}{5}$, $\phi = \frac{\pi}{3}$ et $\psi = \frac{\pi}{4}$ à différents instants	68

2.13	Module de la transformée de Fourier (<i>i.e</i> amplitude) de la fonction $f(t) = \sin(\omega_0 t)$ avec $t = n\Delta t$, $0 < n < N$, $\omega_0 = 3.10^{15} \text{rad.s}^{-1}$ et $\Delta t = 10^{-16} \text{ s}$, pour deux nombres de pas de temps ($N = 5000$ et $N = 10000$).	71
2.14	Partie réelle ε'_r et imaginaire ε''_r de la permittivité relative de l'or issues des données expérimentales de Johnson-Christy [109]	73
2.15	Comparaison de la permittivité relative (partie réelle et imaginaire) pour l'or entre les données expérimentales de Johnson-Christy (symboles) et le modèle de Drude (lignes) ($\omega_p = 1,35.10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$, $\gamma = 1,08.10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$)	76
2.16	Comparaison de la permittivité relative (partie réelle et imaginaire) pour l'or entre les données expérimentales de Johnson-Christy (symboles) et le modèle de Drude-Lorentz (lignes) à 5 oscillateurs de Lorentz	79
2.17	Schéma du calcul dans le temps de \vec{E} , \vec{H} et \vec{P}	82
2.18	Schéma d'un système à deux niveaux	84
2.19	Présentation schématique d'un spectre de PL	85
2.20	Présentation schématique d'un déclin de PL	85
3.1	Vue en coupe transversale du guide d'onde possédant un substrat de SiO_2 , une couche active de SiO_2 avec nanograins de silicium et ions terres rares et un ruban de SiO_2	92
3.2	Schéma des niveaux d'énergie des ng-Si et de Er^{3+} et mécanisme d'excitation de Er^{3+}	96
3.3	Schéma des niveaux d'énergie des ng-Si et de Nd^{3+} et mécanisme d'excitation de Nd^{3+}	96
3.4	Schéma de l'algorithme. Dans la 1 ^{re} partie, le champ électromagnétique et les polarisations sont calculés en considérant les populations indépendantes du temps. Dans la 2 ^e les populations sont calculées en utilisant en utilisant les résultats de la 1 ^{re} partie.	100

3.5	Évolution temporelle de $\langle I_{ij} \rangle (t)$ dans la 1 ^{re} partie de l'algorithme dans laquelle les populations ne dépendent pas du temps et $\Delta N_{ij} > 0$	101
3.6	Évolution du niveau excité N_{Si_1} des nanograins de silicium en fonction du nombre de boucles globales R	102
3.7	Section efficace en fonction de la pulsation ω pour une transition avec $\omega_{ij} = 3,8.10^{15}$ rad.s ⁻¹ pour deux couples de paramètres (largeur de raie $\Delta\omega$, nombre de polarisations N_p) conduisant à la même section efficace lorsque $\omega = \omega_{ij}$	105
3.8	Vue longitudinale de la composante R_z du vecteur de Poynting du signal ($\lambda = 1532$ nm) et de la pompe ($\lambda = 488$ nm) pour une intensité de pompe de 1000 mW.mm ⁻²	107
3.9	Vue transversale de la composante R_z du vecteur de Poynting du signal ($\lambda = 1532$ nm) et de la pompe ($\lambda = 488$ nm) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm ⁻²	108
3.10	Vue longitudinale de la composante R_z du vecteur de Poynting du signal ($\lambda = 1064$ nm) et de la pompe ($\lambda = 488$ nm) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm ⁻²	109
3.11	Différence de population en fonction de la distance de propagation pour les ions erbium (à gauche) et les ions néodyme (à droite) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm ⁻² . L'échelle utilisée est identique pour les deux graphiques. . . .	110
3.12	Différence de population de ng-Si en fonction de la distance de propagation pour les systèmes ng-Si :Er ³⁺ (à gauche) et ng-Si :Nd ³⁺ (à droite) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm ⁻² . L'échelle utilisée est identique pour les deux graphiques. . . .	111
3.13	Différence de population des ng-Si en fonction de la distance de propagation dans le cas d'un dopage avec l'erbium et le néodyme enregistrée à $x = 4,5$ μ m et $y = 8,55$ μ m (centre en de la couche active dans le plan (xy)) pour une puissance de pompe de 1000 mW.mm ⁻²	112

3.14	Inversion de population de Nd^{3+} , Er^{3+} et des ng-Si enregistré à $x = 4,5 \mu\text{m}$ et $y = 8,55 \mu\text{m}$ (centre en de la couche active dans le plan (xy)) et $z = 0$ (début du guide d'onde) en fonction de la puissance de pompe	113
3.15	Gain brut local à $x = 4,5 \mu\text{m}$ et $y = 8,55 \mu\text{m}$ (centre en de la couche active dans le plan (xy)) et $z = 0$ (début du guide d'onde) en fonction de la puissance de pompe pour ng-Si : Er^{3+} et ng-Si : Nd^{3+} . Les pertes trouvées par P. Pirasteh <i>et al</i> [131] sont représentées en pointillés.	115
4.1	Les différentes étapes de la nanolithographie. Figure extraite du travail de l'équipe de G. Rizza.	122
4.2	Évolution de la forme de nanoparticules d'or en fonction de la taille initiale (axe horizontal) et de la fluence (axe vertical). Figure extraite de Rizza <i>et al</i> (2012) [140].	123
4.3	Principe de fonctionnement d'un spectromètre EELS.	123
4.4	Spectre EELS représentant le nombre de coups en fonction de l'énergie perdue (en eV). En insert est présenté le domaine d'énergie correspondant à l'excitation collective des électrons (plasmons).	124
4.5	(a) Spectroscopie par pertes d'énergie d'une nanosphère d'or de diamètre 28 nm dans une matrice de silice. L'énergie de résonance est située à 2.25 eV. (b) Image STEM-HAADF de cette nanosphère. (c) Image EELS pour une perte d'énergie de 2.25 eV. Figures adaptées du travail de l'équipe de G. Rizza.	125
4.6	Définition du rapport d'aspect R	126
4.7	(a) Image HAADF d'une nanoparticule d'or de rapport d'aspect $R = 12$. (b) Spectre EELS correspondant. (c-f) Images EELS à différentes énergies : 0,8 eV, 1,26 eV, 1,60 eV et 2,4 eV. Figure adaptée du travail de l'équipe de G. Rizza.	126
4.8	Évolution de la longueur d'onde de résonance λ en fonction du rapport d'aspect R pour un volume $V_0 = 1,15 \cdot 10^{-23} \text{ m}^3$ fixé.	127

4.9	Amplitude de la transformée de Fourier calculée pour n variant de 0 à 8.10^4 de la fonction $f(t = n\Delta t) = \frac{\sin \omega_0 n \Delta t}{\omega_0 n \Delta t}$ avec $\omega_0 = 8.10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ ($E = 5.2 \text{ eV}$) et $\Delta t = 1,35.10^{-18} \text{ s}$	129
4.10	Schéma de l'expérience numérique.	131
4.11	Augmentation du champ électrique (E/E_0) en fonction de l'énergie relevé à deux endroits : au centre de la nanoparticule (en haut) et à 10 nm de l'extrémité selon l'axe du fil (en bas) pour trois angles d'incidence : $\theta = 0^\circ$, $\theta = 45^\circ$ et $\theta = 90^\circ$.132	
4.12	Carte 2D du rapport E/E_0 d'un nanofil d'or de rapport d'aspect $R = 12$ obtenue par ADE-FDTD.	135
4.13	Rapport E/E_0 à l'intérieur du fil le long de l'axe x passant par le centre de masse du fil pour $\theta = 45^\circ$	136
4.14	Evolution de la longueur d'onde de résonance λ en fonction du rapport d'aspect R pour un volume $V_0 = 1,15.10^{-23} \text{ m}^3$ fixé.137	
4.15	Définition de la longueur d'onde effective λ_{eff} dans le cas d'un fil de longueur $L = 120 \text{ nm}$ pour $m = 3$	138
4.16	Exemple de la différence entre la distance entre 2 ventres situés au centre du fil, et deux ventres situés aux extrémités.	139
4.17	Comparaison de la dispersion trouvée par la méthode ADE-FDTD et par les mesures EELS pour un fil de rayon 5 nm. . .	140
4.18	Schéma d'un cylindre de rayon ρ_0 et de permittivité ε_1 ayant une longueur infinie suivant l'axe x	141
4.19	Comparaison de la relation de dispersion entre un modèle analytique d'un cylindre infiniment long de rayon $\rho = 5 \text{ nm}$ (mode TM), les mesures EELS et les résultats obtenus par ADE-FDTD pour des nanofils de même rayon ρ_0	143
4.20	Définition du pas du réseau h pour un réseau de sphères. . . .	144
4.21	Absorbance en fonction de la longueur d'onde incidente pour différents diamètres de sphères dans un réseau avec un pas $h = 100 \text{ nm}$	145
4.22	Exemple de la discrétisation d'une sphère par un ensemble de 2320 dipôles où chaque boule représente un dipôle. Figure extraite de [82].	147

4.23	Efficacité d'extinction en fonction de l'énergie pour un réseau de nanoparticules d'or de diamètre 30 nm espacée d'un pas h (en nm)	149
4.24	Efficacité d'extinction en fonction de l'énergie pour un réseau de nanoparticules d'or de diamètre 100 nm espacée d'un pas h (en nm)	150

Bibliographie

- [1] A. Taflove and S.C. Hagness. *Computational electromagnetics : the finite-difference time-domain method*. Artech House, 2005.
- [2] E. Desurvire, D. Bayart, B. Desthieux, and S. Bigo. *Erbium-doped fiber amplifiers*. John Wiley, 2002.
- [3] P.H. Stauffer and J.W. Hendley. Rare earth elements - critical resources for high technology. <http://pubs.usgs.gov/fs/2002/fs087-02>, 2002.
- [4] P.W. Atkins and J. De Paula. *Chimie physique*. De Boeck, 2004.
- [5] S. Cueff. *Transfert d'énergie entre nanoclusters de Silicium et Erbium dans des matrices oxydes et nitrures de Si : applications à des diodes électroluminescentes*. Thèse, Université de Caen, 2011.
- [6] A.J. Kenyon. Recent developments in rare-earth doped materials for optoelectronics. *Progress in Quantum Electronics*, 26 :225–284, 2002.
- [7] G.H. Dieke and H.M. Crosswhite. The spectra of the doubly and triply ionized rare earths. *Appl. Opt.*, 2 :675–686, 1963.
- [8] P. Lecoy. *Télécoms sur fibres optiques*. Hermès, 1997.
- [9] R.J. Mears, L. Reekie, I.M. Jauncey, and D.N. Payne. Low-noise erbium-doped fibre amplifier operating at 1.54 μm . *Electronics Letters*, 23 :1026–1028, 1987.
- [10] E. Desurvire, J.R. Simpson, and P.C. Becker. High-gain erbium-doped traveling-wave fiber amplifier. *Optics Letters*, 12 :888–890, 1987.
- [11] W.J. Miniscalco. Erbium-doped glasses for fiber amplifiers at 1500 nm. *Lightwave Technology, Journal of*, 9 :234–250, 1991.

- [12] J.L. Wagener, D.J. DiGiovanni, P.F. Wysocki, M.J.F. Digonnet, and H.J. Shaw. Effects of concentration and clusters in erbium-doped fiberlasers. *Opt. Lett.*, 18 :2014–2016, 1993.
- [13] P.G. Kik and A. Polman. Erbium-doped optical-waveguide amplifiers on silicon. *MRS bulletin*, 23 :48–54, 1998.
- [14] A. Polman, G.N. Van den Hoven, J.S. Custer, J.H. Shin, R. Serna, and P.F.A. Alkemade. Erbium in crystal silicon : Optical activation, excitation, and concentration limits. *Journal of applied physics*, 77 :1256–1262, 1995.
- [15] F. Priolo, G. Franzò, S. Coffa, and A. Carnera. Excitation and nonradiative deexcitation processes of Er^{3+} in crystalline Si. *Phys. Rev. B*, 57 :4443–4455, 1998.
- [16] A.J Kenyon. Erbium in silicon. *Semiconductor Science and Technology*, 20 :R65, 2005.
- [17] M. Fujii, K. Imakita, K. Watanabe, and S. Hayashi. Coexistence of two different energy transfer processes in SiO_2 films containing Si nanocrystals and Er. *Journal of Applied Physics*, 95 :272–280, 2004.
- [18] A. Polman. Erbium implanted thin film photonic materials. *Journal of Applied Physics*, 82 :1–39, 1997.
- [19] J. Michel, J.L. Benton, R.F. Ferrante, D.C. Jacobson, D.J. Eaglesham, E.A. Fitzgerald, Y.H. Xie, J.M. Poate, and L.C. Kimerling. Impurity enhancement of the $1.54\text{ }\mu\text{m}$ Er^{3+} luminescence in silicon. *Journal of Applied Physics*, 70 :2672–2678, 1991.
- [20] D. L. Adler, D. C. Jacobson, D. J. Eaglesham, M. A. Marcus, J. L. Benton, J. M. Poate, and P. H. Citrin. Local structure of $1.54\text{ }\mu\text{m}$ luminescence Er^{3+} implanted in Si. *Applied Physics Letters*, 61 :2181–2183, 1992.
- [21] C. Maurizio, F. Iacona, F. D’Acapito, G. Franzò, and F. Priolo. Er site in Er-implanted Si nanoclusters embedded in SiO_2 . *Phys. Rev. B*, 74 :205428, 2006.

- [22] M.A. Marcus and A. Polman. Local structure around Er in silica and sodium silicate glasses. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 136 :260–265, 1991.
- [23] M. Fujii, M. Yoshida, Y. Kanzawa, S. Hayashi, and K. Yamamoto. 1.54 μm photoluminescence of Er^{3+} doped into SiO_2 films containing Si nanocrystals : Evidence for energy transfer from Si nanocrystals to Er^{3+} . *Applied Physics Letters*, 71 :1198–1200, 1997.
- [24] P.G. Kik and A. Polman. Exciton–erbium interactions in Si nanocrystal-doped SiO_2 . *Journal of Applied Physics*, 88 :1992–1998, 2000.
- [25] P.G. Kik, M.L. Brongersma, and A. Polman. Strong exciton-erbium coupling in Si nanocrystal-doped SiO_2 . *Applied Physics Letters*, 76 :2325–2327, 2000.
- [26] D. Kovalev, J. Diener, H. Heckler, G. Polisski, N. Künzner, and F. Koch. Optical absorption cross sections of Si nanocrystals. *Phys. Rev. B*, 61 :4485–4487, 2000.
- [27] C. Garcia, B. Garrido, P. Pellegrino, R. Ferre, J.A. Moreno, J.R. Morante, L. Pavesi, and M. Cazzanelli. Size dependence of lifetime and absorption cross section of Si nanocrystals embedded in SiO_2 . *Applied physics letters*, 82 :1595–1597, 2003.
- [28] A. Polman and F.C.J.M. van Veggel. Broadband sensitizers for erbium-doped planar optical amplifiers : review. *J. Opt. Soc. Am. B*, 21 :871–892, 2004.
- [29] D. Liang and J.E. Bowers. Recent progress in lasers on silicon. *Nature Photonics*, 4 :511–517, 2010.
- [30] C. Kittel. *Physique de l’état solide*, volume 7. Dunod, 1998.
- [31] L.T. Canham. Silicon quantum wire array fabrication by electrochemical and chemical dissolution of wafers. *Applied Physics Letters*, 57 :1046–1048, 1990.
- [32] C. Delerue, G. Allan, and M. Lannoo. Theoretical aspects of the luminescence of porous silicon. *Phys. Rev. B*, 48 :11024–11036, 1993.

- [33] M. Zacharias, J. Heitmann, R. Scholz, U. Kahler, M. Schmidt, and J. Bläsing. Size-controlled highly luminescent silicon nanocrystals : A SiO/SiO₂ superlattice approach. *Applied Physics Letters*, 80 :661–663, 2002.
- [34] B.T. Sullivan, D.J. Lockwood, H.J. Labbé, and Z.H. Lu. Photoluminescence in amorphous Si/SiO₂ superlattices fabricated by magnetron sputtering. *Applied Physics Letters*, 69 :3149–3151, 1996.
- [35] R.S. Wagner and W.C. Ellis. Vapor-liquid-solid mechanism of single crystal growth. *Applied Physics Letters*, 4 :89–90, 1964.
- [36] T.D. Steiner. *Semiconductor nanostructures for optoelectronic applications*. Artech House, 2004.
- [37] S. Charvet, R. Madelon, and R. Rizk. Structural, ellipsometry and photoluminescence spectroscopy studies of silicon nanograins embedded in a silica matrix. *Solid-State Electronics*, 45 :1505–1511, 2001.
- [38] E. Lioudakis, A. Antoniou, A. Othonos, C. Christofides, A.G. Nassiopoulou, Ch.B. Lioutas, and N. Frangis. The role of surface vibrations and quantum confinement effect to the optical properties of very thin nanocrystalline silicon films. *Journal of Applied Physics*, 102 :083534–083534, 2007.
- [39] A.M. Ali, T. Inokuma, Y. Kurata, and S. Hasegawa. Luminescence properties of nanocrystalline silicon films. *Materials Science and Engineering : C*, 15 :125–128, 2001.
- [40] B. Garrido Fernandez, M. López, C. García, A. Pérez-Rodríguez, J. R. Morante, C. Bonafos, M. Carrada, and A. Claverie. Influence of average size and interface passivation on the spectral emission of Si nanocrystals embedded in SiO₂. *Journal of Applied Physics*, 91 :798–807, 2002.
- [41] M.V. Wolkin, J. Jorne, P.M. Fauchet, G. Allan, and C. Delerue. Electronic states and luminescence in porous silicon quantum dots : The role of oxygen. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :197–200, 1999.
- [42] Y. Kanemitsu, S. Okamoto, M. Otobe, and S. Oda. Photoluminescence mechanism in surface-oxidized silicon nanocrystals. *Phys. Rev. B*, 55 :R7375–R7378, 1997.

- [43] T.Y. Kim, N.M. Park, K.H. Kim, G.Y. Sung, Y.W. Ok, T.Y. Seong, and C.J. Choi. Quantum confinement effect of silicon nanocrystals in situ grown in silicon nitride films. *Applied Physics Letters*, 85 :5355–5357, 2004.
- [44] G. Ledoux, J. Gong, F. Huisken, O. Guillois, and C. Reynaud. Photoluminescence of size-separated silicon nanocrystals : Confirmation of quantum confinement. *Applied Physics Letters*, 80 :4834–4836, 2002.
- [45] V.A. Belyakov, V.A. Burdov, R. Lockwood, and A. Meldrum. Silicon nanocrystals : fundamental theory and implications for stimulated emission. *Advances in Optical Technologies*, 2008, 2008.
- [46] F. Priolo, G. Franzo, D. Pacifici, V. Vinciguerra, F. Iacona, and A. Irrera. Role of the energy transfer in the optical properties of undoped and Er-doped interacting Si nanocrystals. *Journal of Applied Physics*, 89 :264–272, 2001.
- [47] A.J. Kenyon, P.F. Trwoga, M. Federighi, and C.W. Pitt. Optical properties of pecvd erbium-doped silicon-rich silica : evidence for energy transfer between silicon microclusters and erbium ions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 6 :L319, 1994.
- [48] G. Franzò, V. Vinciguerra, and F. Priolo. The excitation mechanism of rare-earth ions in silicon nanocrystals. *Applied Physics A*, 69 :3–12, 1999.
- [49] F. Gourbilleau, R. Madelon, C. Dufour, and R. Rizk. Fabrication and optical properties of Er-doped multilayers Si-rich SiO₂/SiO₂ : size control, optimum Er–Si coupling and interaction distance monitoring. *Optical Materials*, 27 :868–875, 2005.
- [50] G. Wora Adeola. *Propriétés de Luminescence de films d’oxyde de silicium dopés à l’erbium*. Thèse, Université de Nancy, 2007.
- [51] M. Fujii, M. Yoshida, S. Hayashi, and K. Yamamoto. Photoluminescence from SiO₂ films containing Si nanocrystals and Er : Effects of nanocrystalline size on the photoluminescence efficiency of Er³⁺. *Journal of Applied Physics*, 84 :4525–4531, 1998.

- [52] J.S. Chang, J.H. Jhe, M.S. Yang, J.H. Shin, K.J. Kim, and D.W. Moon. Effects of silicon nanostructure evolution on Er^{3+} luminescence in silicon-rich silicon oxide/Er-doped silica multilayers. *Applied Physics Letters*, 89 :181909, 2006.
- [53] M. Wojdak, M. Klik, M. Forcales, O.B. Gusev, T. Gregorkiewicz, D. Pacifici, G. Franzò, F. Priolo, and F. Iacona. Sensitization of er luminescence by si nanoclusters. *Phys. Rev. B*, 69 :233315, 2004.
- [54] F. Gourbilleau, C. Dufour, M. Levalois, J. Vicens, R. Rizk, C. Sada, F. Enrichi, and G. Battaglin. Room-temperature $1.54 \mu\text{m}$ photoluminescence from Er-doped Si-rich silica layers obtained by reactive magnetron sputtering. *Journal of Applied Physics*, 94 :3869–3874, 2003.
- [55] G. Franzò, S. Boninelli, D. Pacifici, F. Priolo, F. Iacona, and C. Bongiorno. Sensitizing properties of amorphous si clusters on the $1.54 \mu\text{m}$ luminescence of Er in Si-rich SiO_2 . *Applied Physics Letters*, 82 :3871–3873, 2003.
- [56] A.J. Kenyon, C.E. Chrysosou, C.W. Pitt, T. Shimizu-Iwayama, D.E. Hole, N. Sharma, and C.J. Humphreys. Luminescence from erbium-doped silicon nanocrystals in silica : Excitation mechanisms. *Journal of Applied Physics*, 91 :367–374, 2002.
- [57] E. Steveler. *Etude des mécanismes de photoluminescence dans les nitrures et oxydes de silicium dopés aux terres rares (Er, Nd)*. Thèse, Université de Lorraine, 2012.
- [58] T. Kimura, H. Isshiki, S. Ide, T. Shimizu, T. Ishida, and R. Saito. Suppression of auger deexcitation and temperature quenching of the Er-related $1.54 \mu\text{m}$ emission with an ultrathin oxide interlayer in an Er/ SiO_2 /Si structure. *Journal of Applied Physics*, 93 :2595–2601, 2003.
- [59] J. Heitmann, M. Schmidt, M. Zacharias, V.Yu. Timoshenko, M.G. Lisachenko, and P.K. Kashkarov. Fabrication and photoluminescence properties of erbium doped size-controlled silicon nanocrystals. *Materials Science and Engineering : B*, 105 :214–220, 2003.
- [60] D.L. Dexter. A theory of sensitized luminescence in solids. *The Journal of Chemical Physics*, 21 :836–850, 1953.

- [61] B. Garrido, C. Garcia, S.-Y. Seo, P. Pellegrino, D. Navarro-Urrios, N. Daldosso, L. Pavesi, F. Gourbilleau, and R. Rizk. Excitable Er fraction and quenching phenomena in Er-doped SiO₂ layers containing Si nanoclusters. *Phys. Rev. B*, 76 :245308, 2007.
- [62] K. Watanabe, M. Fujii, and S. Hayashi. Resonant excitation of Er³⁺ by the energy transfer from Si nanocrystals. *Journal of Applied Physics*, 90 :4761–4767, 2001.
- [63] D. Pacifici, G. Franzo, F. Priolo, F. Iacona, and L. Dal Negro. Modeling and perspectives of the Si nanocrystals-Er interaction for optical amplification. *Phys. Rev. B*, 67 :245301, 2003.
- [64] V. Toccafondo, S. Faralli, and F. Di Pasquale. Evanescent multimode longitudinal pumping scheme for Si-nanocluster sensitized Er³⁺ doped waveguide amplifiers. *Lightwave Technology, Journal of*, 26 :3584–3591, 2008.
- [65] F. Gourbilleau, M. Levalois, C. Dufour, J. Vicens, and R. Rizk. Optimized conditions for an enhanced coupling rate between Er ions and Si nanoclusters for an improved 1.54 μm emission. *Journal of Applied Physics*, 95 :3717–3722, 2004.
- [66] C.H. Liang. *Propriétés optiques des films minces à base de Si dopé Nd : Vers un amplificateur optique*. Thèse, Université de Caen, CIMAP, 2013.
- [67] P. Nalini. *Films minces à base de Si nanostructuré pour des cellules photovoltaïques de 3^{ème} génération*. Thèse, Université de Caen, CIMAP, 2013.
- [68] D. Bréard. *Croissance de films minces de silice enrichies en nano-grains de silicium et dopées aux ions Nd³⁺ : caractérisation et optimisation des propriétés optiques*. Thèse, Université de Caen, CIMAP, 2007.
- [69] E.J. Zeman and G.C. Schatz. An accurate electromagnetic theory study of surface enhancement factors for silver, gold, copper, lithium, sodium, aluminum, gallium, indium, zinc, and cadmium. *Journal of Physical Chemistry*, 91 :634–643, 1987.

- [70] D.L. Mills and V.M. Agranovich. *Surface Polaritons : Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces*. North-Holland publ., 1982.
- [71] W.L. Barnes, A. Dereux, and T.W. Ebbesen. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424 :824–830, 2003.
- [72] L. Liu. *Design, Fabrication, and Characterization of Nano-Photonic Components Based on Silicon and Plasmonic Material*. PhD thesis, 2006.
- [73] M. Roblin. *Modélisation numérique et imagerie optique en champ proche par rétro-injection laser de guides d’onde plasmoniques*. Thèse, Université de Caen, 2013.
- [74] D.K. Gramotnev and S.I. Bozhevolnyi. Plasmonics beyond the diffraction limit. *Nature Photonics*, 4 :83–91, 2010.
- [75] H.A. Atwater. The promise of plasmonics. *Scientific American*, 296 :56–62, 2007.
- [76] E. Ozbay. Plasmonics : Merging photonics and electronics at nanoscale dimensions. *Science*, 311 :189–193, 2006.
- [77] I. Freestone, N. Meeks, M. Sax, and C. Higgitt. The lycurgus cup - a roman nanotechnology. *Gold Bulletin*, 40 :270–277, 2007.
- [78] J. Lafait, S. Berthier, C. Andraud, V. Reillon, and J. Boulenguez. Physical colors in cultural heritage : Surface plasmons in glass. *Comptes Rendus Physique*, 10 :649–659, 2009.
- [79] J.P. Pérez, R. Carlos, and R. Fleckinger. *Electromagnétisme : Fondements et applications avec 300 exercices et problèmes résolus*. Dunod, 2001.
- [80] V. Myroshnychenko, J. Rodríguez-Fernández, I. Pastoriza-Santos, A.M. Funston, C. Novo, P. Mulvaney, L.M. Liz-Marzán, and F.J.G. de Abajo. Modelling the optical response of gold nanoparticles. *Chem. Soc. Rev.*, 37 :1792–1805, 2008.
- [81] S.A. Maier. *Plasmonics : fundamentals and applications*. Springer Verlag, 2007.

- [82] B. T. Draine. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains. *The astrophysical Journal*, 333 :848–872, 1988.
- [83] M. Hamidi. *Modélisation par la méthode FDTD des plasmons de surfaces localisés*. PhD thesis, Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou, 2012.
- [84] C.F. Bohren and D.R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley-VCH, 1998.
- [85] J.A. Stratton. *Electromagnetic theory*, volume 33. John Wiley & Sons, 2007.
- [86] U. Fano. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Physical Review*, 124 :1866, 1961.
- [87] O. Újsághy, J. Kroha, L. Szunyogh, and A. Zawadowski. Theory of the Fano resonance in the STM tunneling density of states due to a single kondo impurity. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2557–2560, 2000.
- [88] M.V. Rybin, A.B. Khanikaev, M. Inoue, K.B. Samusev, M.J. Steel, G. Yushin, and M.F. Limonov. Fano resonance between mie and Bragg scattering in photonic crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :023901, 2009.
- [89] A. Ueda and M. Eto. Resonant tunneling and Fano resonance in quantum dots with electron-phonon interaction. *Phys. Rev. B*, 73 :235353, 2006.
- [90] A.E. Miroshnichenko, S. Flach, and Y.S. Kivshar. Fano resonances in nanoscale structures. *Reviews of Modern Physics*, 82 :2257, 2010.
- [91] Y.S. Joe, A.M. Satanin, and C.S. Kim. Classical analogy of Fano resonances. *Physica Scripta*, 74 :259, 2006.
- [92] F. Patthey, M.H. Schaffner, W.D. Schneider, and B. Delley. Observation of a Fano resonance in photoemission. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :2971–2974, 1999.
- [93] M. Hase, J. Demsar, and M. Kitajima. Photoinduced Fano resonance of coherent phonons in zinc. *Phys. Rev. B*, 74 :212301, 2006.

- [94] U. Eichmann, T. F. Gallagher, and R. M. Konik. Fano line shapes reconsidered : Symmetric photoionization peaks from pure continuum excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :233004, 2003.
- [95] V. Giannini, Y. Francescato, H. Amrania, C.C. Phillips, and S.A. Maier. Fano resonances in nanoscale plasmonic systems : a parameter-free modeling approach. *Nano letters*, 11 :2835–2840, 2011.
- [96] F. Hao, Y. Sonnefraud, P.V. Dorpe, S.A. Maier, N.J. Halas, and P. Nordlander. Symmetry breaking in plasmonic nanocavities : Subradiant LSPR sensing and a tunable Fano resonance. *Nano Letters*, 8 :3983–3988, 2008.
- [97] B. Luk'yanchuk, N.I. Zheludev, S.A. Maier, N.J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, and C.T. Chong. The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials. *Nature materials*, 9 :707–715, 2010.
- [98] J. Zhang and L. Zhang. Nanostructures for surface plasmons. *Advances in Optics and Photonics*, 4 :157–321, 2012.
- [99] S. Zou, N. Janel, and G.C. Schatz. Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon lineshapes. *The Journal of Chemical Physics*, 120 :10871–10875, 2004.
- [100] B. Augu   and W.L. Barnes. Collective resonances in gold nanoparticle arrays. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :143902, 2008.
- [101] K. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 14 :302–307, 1966.
- [102] B. Engquist and A. Majda. Absorbing boundary conditions for numerical simulation of waves. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 74 :1765–1766, 1977.
- [103] G. Mur. Absorbing boundary conditions for the finite-difference approximation of the time-domain electromagnetic-field equations. *Electromagnetic Compatibility, IEEE Transactions on*, pages 377–382, 1981.

- [104] J.P. Berenger. A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves. *Journal of computational physics*, 114 :185–200, 1994.
- [105] D.S. Katz, E.T. Thiele, and A. Taflove. Validation and extension to three dimensions of the Berenger PML absorbing boundary condition for FD-TD meshes. *Microwave and Guided Wave Letters, IEEE*, 4 :268–270, 1994.
- [106] A.B. Fallahkhair, K.S. Li, and T.E. Murphy. Vector finite difference modesolver for anisotropic dielectric waveguides. *Journal of Lightwave Technology*, 26 :1423–1431, 2008.
- [107] P.R. Amestoy, I. S. Duff, J.-Y. L’Excellent, and J. Koster. A fully asynchronous multifrontal solver using distributed dynamic scheduling. *SIAM Journal on Matrix Analysis and Applications*, 23 :15–41, 2001.
- [108] P.R. Amestoy, A. Guermouche, J.-Y. L’Excellent, and S. Pralet. Hybrid scheduling for the parallel solution of linear systems. *Parallel computing*, 32 :136–156, 2006.
- [109] P.B. Johnson and R.W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6 :4370–4379, 1972.
- [110] P.G. Petropoulos. Stability and phase error analysis of FD-TD in dispersive dielectrics. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 42 :62–69, 1994.
- [111] A.E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, 1986.
- [112] A.M. Fox. *Optical properties of solids*. Oxford university press, 2001.
- [113] G.P. Agrawal. *Fiber-optic communication systems*. Wiley, 1997.
- [114] O. Lumholt, A. Bjarklev, T. Rasmussen, and C. Lester. Rare earth-doped integrated glass components : modeling and optimization. *Light-wave Technology, Journal of*, 13 :275–282, 1995.
- [115] A. Podhorodecki, J. Misiewicz, F. Gourbilleau, J. Cardin, and C. Dufour. High energy excitation transfer from silicon nanocrystals to neodymium ions in silicon-rich oxide film. *Electrochemical and Solid-State Letters*, 13 :K26–K28, 2010.

- [116] N. Daldosso, D. Navarro-Urrios, M. Melchiorri, C. Garcia, P. Pellegrino, B. Garrido, C. Sada, G. Battaglin, F. Gourbilleau, R. Rizk, et al. Er-coupled Si nanocluster waveguide. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 12 :1607–1617, 2006.
- [117] M. Govoni, I. Marri, and S. Ossicini. Carrier multiplication between interacting nanocrystals for fostering silicon-based photovoltaics. *Nature Photonics*, 6 :672–679, 2012.
- [118] A.S. Nagra and R.A. York. FDTD analysis of wave propagation in nonlinear absorbing and gain media. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 46 :334–340, 1998.
- [119] O. Lumholt, T. Rasmussen, and A Bjarklev. Modelling of extremely high concentration erbium-doped silica waveguides. *Electronics Letters*, 29 :495–496, 1993.
- [120] R. Paschotta. *Encyclopedia of laser physics and technology*, volume 1. Wiley-vch Berlin, 2008.
- [121] S.L. Oliveira, D.F. de Sousa, A.A. Andrade, L.A.O. Nunes, and T. Catunda. Upconversion in Nd³⁺-doped glasses : Microscopic theory and spectroscopic measurements. *Journal of Applied Physics*, 103 :023103, 2008.
- [122] J. Yang. *Neodymium-doped waveguide amplifiers and lasers for integrated optical applications*. PhD thesis, University of Twente, Enschede, 2010.
- [123] E.O. Serqueira, N.O. Dantas, A.F.G. Monte, and M.J.V. Bell. Judd Ofelt calculation of quantum efficiencies and branching ratios of Nd³⁺ doped glasses. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 352 :3628–3632, 2006.
- [124] C. Bibeau, S.A. Payne, and H.T. Powell. Direct measurements of the terminal laser level lifetime in neodymium-doped crystals and glasses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12 :1981–1992, 1995.
- [125] B.M. Van Der Ende, R.L. Brooks, H.F. Tiedje, Hong Sun, and H.K. Haugen. Measurement of the ⁴F_{5/2} and ²H(2)_{9/2} manifold lifetime in Nd³⁺ : YLiF₄. *Journal of Luminescence*, 117 :13–19, 2006.

- [126] B.M. Van Der Ende, R.L. Brooks, H.F. Tiedje, and H.K. Haugen. Measurement of the $^4F_{5/2}$ and $^2H(2)_{9/2}$ manifold lifetime in $Nd^{3+} : Y_3Al_5O_{12}$ and $Nd^{3+} : LaF_3$. *Journal of Luminescence*, 124 :311–315, 2007.
- [127] A. Fafin, J. Cardin, C. Dufour, and F. Gourbilleau. Modeling of the electromagnetic field and level populations in a waveguide amplifier : a multi-scale time problem. *Opt. Express*, 21 :24171–24184, 2013.
- [128] N. Daldosso, D. Navarro-Urrios, M. Melchiorri, L. Pavesi, F. Gourbilleau, M. Carrada, R. Rizk, C. Garcia, P. Pellegrino, B. Garrido, et al. Absorption cross section and signal enhancement in Er-doped Si nanocluster rib-loaded waveguides. *Applied Physics Letters*, 86 :261103–261103, 2005.
- [129] D. Navarro-Urrios, A. Pitanti, N. Daldosso, F. Gourbilleau, R. Rizk, G. Pucker, and L. Pavesi. Quantification of the carrier absorption losses in Si-nanocrystal rich rib waveguides at $1.54 \mu m$. *Applied Physics Letters*, 92 :–, 2008.
- [130] R.D. Kekatpure and M.L. Brongersma. Quantification of free-carrier absorption in silicon nanocrystals with an optical microcavity. *Nano Letters*, 8 :3787–3793, 2008.
- [131] P. Pirasteh, J. Charrier, Y. Dumeige, Y.G. Boucher, O. Debieu, and F. Gourbilleau. Study of optical losses of Nd^{3+} doped silicon rich silicon oxide for laser cavity. *Thin Solid Films*, 520 :4026–4030, 2012.
- [132] D. Navarro-Urrios, F. Ferrarese Lupi, N. Prtljaga, A. Pitanti, O. Jambois, J.M. Ramirez, Y. Berencen, N. Daldosso, B. Garrido, and L. Pavesi. Copropagating pump and probe experiments on Si-nc in SiO_2 rib waveguides doped with Er : The optical role of non-emitting ions. *Applied Physics Letters*, 99 :231114–231114–3, 2011.
- [133] O. Debieu, D. Bréard, A. Podhorodecki, G. Zatryb, J. Misiewicz, C. Labbé, J. Cardin, and F. Gourbilleau. Effect of annealing and Nd concentration on the photoluminescence of Nd^{3+} ions coupled with silicon nanoparticles. *Journal of Applied Physics*, 108 :–, 2010.

- [134] D.R. Zimmerman and L.H. Spiekman. Amplifiers for the masses : EDFA, EDWA, and SOA amplets for metro and access applications. *J. Lightwave Technol.*, 22 :63, 2004.
- [135] J. Yang, K. van Daltsen, K. Wörhoff, F. Ay, and M. Pollnau. High-gain $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{Nd}^{3+}$ channel waveguide amplifiers at 880 nm, 1060 nm, and 1330 nm. *Applied Physics B*, 101 :119–127, 2010.
- [136] J. Lee, J. Shin, and N. Park. Optical gain at 1.5 μm in Si-nanocrystal sensitized, Er-doped silica waveguide using top-pumping 470 nm LED. In *Optical Fiber Communication Conference*, page PD19. Optical Society of America, 2004.
- [137] P. Pirasteh, J. Charrier, Y. Dumeige, J.L. Doualan, P. Camy, O. Debieu, C.H. Liang, L. Khomenkova, J. Lemaitre, Y.G. Boucher, and F. Gourbilleau. Guided photoluminescence study of Nd-doped silicon rich silicon oxide and silicon rich silicon nitride waveguides. *Journal of Applied Physics*, 114 :–, 2013.
- [138] J. Muller, G. Parent, S. Fumeron, G. Jeandel, and D. Lacroix. Near-field and far-field modeling of scattered surface waves. application to the apertureless scanning near-field optical microscopy. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 112 :1162–1169, 2011.
- [139] E. Snoeks, A. van Blaaderen, T. van Dillen, C.M. van Kats, M.L. Brongersma, and A. Polman. Colloidal ellipsoids with continuously variable shape. *Advanced Materials*, 12 :1511–1514, 2000.
- [140] G. Rizza, P.E. Coulon, V. Khomenkov, C. Dufour, I. Monnet, M. Toulemonde, S. Perruchas, T. Gacoin, D. Mailly, X. Lafosse, et al. Rational description of the ion-beam shaping mechanism. *Physical Review B*, 86 :035450, 2012.
- [141] C. Orleans, J.P. Stoquert, C. Estournes, C. Cerruti, J.J. Grob, J.L. Guille, F. Haas, D. Muller, and M. Richard-Plouet. Anisotropy of Co nanoparticles induced by swift heavy ions. *Physical Review B*, 67 :220101, 2003.

- [142] S. Roorda, T. van Dillen, A. Polman, C. Graf, A. van Blaaderen, and B.J. Kooi. Aligned gold nanorods in silica made by ion irradiation of core-shell colloidal particles. *Advanced Materials*, 16 :235–237, 2004.
- [143] AC. Cangellaris and D.B. Wright. Analysis of the numerical error caused by the stair-stepped approximation of a conducting boundary in FDTD simulations of electromagnetic phenomena. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 39 :1518–1525, 1991.
- [144] J.B. Schneider and K.L. Shlager. FDTD simulations of tem horns and the implications for staircased representations. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 45 :1830–1838, 1997.
- [145] N. Kaneda, B. Houshmand, and T. Itoh. FDTD analysis of dielectric resonators with curved surfaces. *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on*, 45 :1645–1649, 1997.
- [146] L. Cao, R.A. Nome, J.M. Montgomery, S.K. Gray, and N.F. Scherer. Controlling plasmonic wave packets in silver nanowires. *Nano letters*, 2010.
- [147] H. Wei, A. Reyes-Coronado, P. Nordlander, J. Aizpurua, and H. Xu. Multipolar plasmon resonances in individual Ag nanorice. *ACS nano*, 4 :2649–2654, 2010.
- [148] J. Dorfmueller, R. Vogelgesang, W. Khunsin, C. Rockstuhl, C. Etrich, and K. Kern. Plasmonic nanowire antennas : experiment, simulation, and theory. *Nano letters*, 2010.
- [149] D. Rossouw, M. Couillard, J. Vickery, E. Kumacheva, and GA Botton. Multipolar plasmonic resonances in silver nanowire antennas imaged with a subnanometer electron probe. *Nano letters*, 2011.
- [150] T. Søndergaard and S. Bozhevolnyi. Slow-plasmon resonant nanostructures : scattering and field enhancements. *Physical Review B*, 75 :073402, 2007.
- [151] T. Søndergaard, J. Beermann, A. Boltasseva, and S.I. Bozhevolnyi. Slow-plasmon resonant-nanostrip antennas : Analysis and demonstration. *Physical Review B*, 77 :115420, 2008.

- [152] O. Nicoletti, M. Wubs, N.A. Mortensen, W. Sigle, P.A. van Aken, and P.A. Midgley. Surface plasmon modes of a single silver nanorod : an electron energy loss study. *Opt. Express*, 19 :15371–15379, 2011.
- [153] B.E. Sernelius. *Surface modes in physics*. John Wiley & Sons, 2011.
- [154] S.A. Schelkunoff. Some equivalence theorems of electromagnetics and their application to radiation problems. *Bell System Technical Journal*, 15 :92–112, 1936.
- [155] C.A. Balanis. *Advanced engineering electromagnetics*, volume 20. Wiley New York, 1989.
- [156] B.T. Draine and P.J. Flatau. Discrete-dipole approximation for scattering calculations. *JOSA A*, 11 :1491–1499, 1994.
- [157] H. DeVoe. Optical properties of molecular aggregates. i. classical model of electronic absorption and refraction. *The Journal of Chemical Physics*, 41 :393–400, 1964.
- [158] H. DeVoe. Optical properties of molecular aggregates. ii. classical theory of the refraction, absorption, and optical activity of solutions and crystals. *The Journal of Chemical Physics*, 43 :3199–3208, 1965.
- [159] E. M. Purcell and C. R. Pennypacker. Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains. 186 :705–714, 1973.
- [160] J. J. Goodman, P. J. Flatau, and B. T. Draine. Application of fast-Fourier-transform techniques to the discrete-dipole approximation. *Opt. Lett.*, 16 :1198–1200, 1991.
- [161] B.T. Draine and P.J. Flatau. Discrete-dipole approximation for periodic targets : theory and tests. *JOSA A*, 25 :2693–2703, 2008.
- [162] H. Baida. *Propriétés optiques et spectroscopie non-linéaire de nanoparticules individuelles*. PhD thesis, Université Claude Bernard-Lyon I, 2010.
- [163] A. Vial, A. Grimault, D. Macías, D. Barchiesi, and M.L. de la Chapelle. Improved analytical fit of gold dispersion : application to the modeling of extinction spectra with a finite-difference time-domain method. *Phys. Rev. B*, 71 :085416, 2005.

- [164] B. Auguie, X.M. Bendana, W.L. Barnes, and F.J.G. de Abajo. Diffractive arrays of gold nanoparticles near an interface : Critical role of the substrate. *Physical Review B*, 82 :155447, 2010.
- [165] J. Goffard, D. Gérard, P. Miska, A. Baudrion, R. Deturche, and J. Plain. Plasmonic engineering of spontaneous emission from silicon nanocrystals. *Scientific reports*, 3, 2013.
- [166] J.S. Biteen, L.A. Sweatlock, H. Mertens, N.S. Lewis, A. Polman, and H.A. Atwater. Plasmon-enhanced photoluminescence of silicon quantum dots : Simulation and experiment. *The Journal of Physical Chemistry C*, 111 :13372–13377, 2007.

Résumé

Ce travail de thèse est basé sur la modélisation de l'interaction onde-matière dans des matériaux nanostructurés par la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD) associée à des équations différentielles auxiliaires (ADE). Le code de calcul développé a été appliqué à deux domaines : la photonique avec l'étude de guides d'onde co-dopés avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares et la plasmonique avec l'étude de nanoparticules d'or.

Des guides d'ondes co-dopés avec des nanograins de silicium et des ions de terres rares, pouvant être soit des ions erbium ou des ions néodyme, ont été étudiés numériquement. Pour cela un nouvel algorithme basé sur la méthode ADE-FDTD a été développé. Cela a permis de caractériser, en fonction de la terre rare, la propagation de la pompe et du signal dans le guide ainsi que le gain brute pouvant être atteint. Il a été montré notamment que le gain potentiel atteignable d'un guide d'onde dopé avec des ions néodymes est supérieur d'un ordre de grandeur par rapport à celui d'un guide d'onde dopé avec des ions erbiums.

Des nanoparticules d'or individuelles ont été étudiées numériquement et les résultats ont été comparés à des mesures faites par spectroscopie de pertes d'énergies (EELS). Les énergies de résonance trouvée par les deux approches pour différentes formes de particules se sont révélées être en très bon accord. De plus, la relation de dispersion d'un nanofil trouvée par mesure EELS et ADE-FDTD a pu être vérifiée par un modèle analytique. Enfin des réseaux de nanoparticules d'or ont été modélisés dans le but d'obtenir une résonance de type Fano.

Mots clés : ADE-FDTD, simulation numérique, champ électromagnétique, plasmons de surface localisés, nanoparticules, guide d'onde, silicium, plasmonique, terre rare, résonance Fano

Abstract

This thesis is based on the modeling of wave-matter interaction in nanostructured materials by the finite-difference time-domain (FDTD) associated with auxiliary differential equations (ADE). The developed numerical method was applied to two areas : (i) the study of waveguides co-doped with silicon nanograins and rare earth ions (photonics) and (ii) the study of optical properties of gold nanoparticles (plamronics).

Waveguides co-doped with silicon nanograins and rare earth ions, which can be either erbium or neodymium ions were investigated numerically by means of a new algorithm based on the ADE-FDTD method. This allows us to characterize, for two rare earth, the propagation of the pump and the signal inside the waveguide as well as the achievable gross gain can be achieved. It has been shown that the reachable potential gross gain of a waveguide doped with neodymium ions is greater by one order of magnitude to the one of a waveguide doped with erbium ions.

Individual structured gold nanoparticles have been studied numerically and the results were compared with measurements made by energy loss spectroscopy (EELS) mapping. The resonance energies found by the two approaches for different types of particles were found to be in very good agreement. Moreover, the dispersion relation of modes of nanowire found by EELS and ADE-FDTD has been confirmed by an analytical model. Finally array of gold nanoparticles have been modeled in order to obtain a Fano resonance.

Keywords : ADE-FDTD, numerical simulation, electromagnetic wave, localized surface plasmon resonance, nanoparticles, waveguide, silicon, plasmonic, rare earth, Fano resonance